

## TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES .....	V
LISTE DES TABLEAUX.....	VIII
NOMENCLATURE .....	IX
INTRODUCTION GÉNÉRALE ET PROBLÉMATIQUE.....	XI
Introduction générale .....	12
Problématique .....	13

## CHAPITRE I RECHERCHE BIBLIOGRAPHIQUE ET OBJECTIFS

I.1	Introduction .....	16
I.2	Techniques de mesure de la diffusion d'humidité.....	16
I.2.1	Diffusion de l'eau à volume constant .....	17
I.2.2	Diffusion de l'eau avec gonflement .....	17
I.3	Cinétique d'absorption .....	18
I.4	Théorie de la diffusion.....	18
I.4.1	Deuxième Loi de Fick et modèle de diffusion Fickienne .....	19
I.4.2	Exemple de plaque plane en immersion.....	19
I.4.3	Modèle de diffusion non Fickienne .....	22
I.4.4	Le modèle de Langmuir .....	23
I.4.5	Le modèle à diffusivité variable dans le temps .....	23
I.4.6	Modèle de diffusion pour le cas de l'immersion .....	24
I.5	Modélisation par analogie du transfert thermique – massique .....	26
I.6	Paramètres influant sur le processus de diffusion .....	28
I.6.1	Taux d'humidité relative .....	28
I.6.2	La température.....	28
I.7	Influence d'humidité sur le comportement mécanique des cfn.....	29
I.8	Objectifs .....	32

## CHAPITRE II MATÉRIAU, PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL ET EFFET DU RENFORCEMENT EN FIBRES

II.1	Introduction .....	34
II.2	Description du matériau et des éprouvettes de l'essai .....	34
II.3	Dispositif expérimental .....	35
II.4	Résultats expérimentaux.....	37
II.4.1	Polypropylène seul .....	37
II.4.2	Composite polypropylène/Chanvre .....	39
II.4.2.1	Protocole expérimental .....	39
II.4.2.2	Essai de traction simple .....	40
II.4.2.3	Essai de charge-décharge .....	42
II.4.2.4	Endommagement pendant la charge et la décharge .....	44
II.4.2.5	Essai de traction cyclique.....	45
II.5	Conclusion.....	47

CHAPITRE III ÉTUDE DE L'EFFET DE LA TEMPÉRATURE ET DE L'HUMIDITÉ	
III.1	Introduction ..... 49
III.2	Effet de l'humidité sur les propriétés mécaniques du composite ..... 49
III.3	Essais de traction simple ..... 50
III.4	Effet de l'humidité et la température sur les propriétés mécaniques ..... 55
III.5	Essais de traction charge-décharge..... 60
III.6	Conclusion..... 64
CHAPITRE IV CINÉTIQUE DE DIFFUSION ET MOUILLABILITÉ	
IV.1	Introduction ..... 67
IV.2	Cinétique de diffusion d'eau en immersion..... 67
IV.3	Test de mouillabilité ..... 68
IV.4	Prise d'humidité en immersion..... 70
IV.5	Effet de la température sur la prise de masse ..... 76
IV.6	Conclusion..... 79
CHAPITRE V ÉTUDE PAR ÉLÉMENTS FINIS ET SIMULATION NUMÉRIQUE	
V.1	Introduction ..... 81
V.2	Diffusion d'humidité et analogie thermique..... 82
V.3	Modélisation par éléments finis..... 83
V.3.1	Étude de cas sur COSMOS/M ..... 83
V.3.1.1	Conditions initiales et aux limites ..... 84
V.3.1.2	Maillage et résultats..... 85
V.3.2	Calcul de la prise de masse sur Visual Basic..... 87
V.3.3	Simulation de la solution analytique de l'équation fick ..... 92
V.3.3.1	Comparaison des deux modèles analytique et éléments finis (COSMOS/M – Visual Basic)..... 92
V.4	Conclusion..... 95
CHAPITRE VI ÉLABORATION D'UN NOUVEAU MODÈLE DE DIFFUSION À DIFFUSIVITÉ VARIABLE DANS LE TEMPS	
VI.1	Nouveau modèle non Fickien..... 97
VI.2	Modélisation par éléments finis..... 103
VI.3	Conclusion..... 106
CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES	
	Conclusion générale ..... 108
	Perspectives..... 110
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	
	Références bibliographiques ..... 112

## Liste des figures

Figure I. 1 flux de concentration dans un solide.....	19
Figure I. 2 plaque mince en immersion.....	20
Figure I. 3 Courbes de diffusion de type Fick.....	21
Figure I. 4 Courbes schématiques représentatives de quatre catégories de cinétiques d'absorption d'eau non Fickienne.....	22
Figure I. 5 Conditionnement dans un bain humide, échantillon exposé à deux faces.....	25
Figure I. 6 Comparaisons expérimentales et théoriques du comportement d'absorption d'eau par le composite polyester non saturé – chanvre.....	26
Figure I. 7 Effets du vieillissement en immersion sur les performances mécaniques en traction du polypropylène/40% fibres de chanvre/0% fibres de verre.....	30
Figure II. 1 Formule chimique du polypropylène.....	34
Figure II. 2 Description des éprouvettes de l'essai, éprouvettes polypropylène renforcées à 30 % en fraction volumique de fibres courtes de chanvres, fabriquées et moulées à l'INSAT.....	35
Figure II. 3 a) Granules en polypropylène - 30% de fibres de chanvre, b) Machine d'injection, c) Éprouvette sous forme d'haltère PP/Chanvre, fabriquées et moulées à l'INSAT.....	35
Figure II. 4 Machine électromécanique d'essais de traction INSTRON.....	36
Figure II. 5 Essai de traction sur éprouvette de polypropylène saine (non vieillie).....	37
Figure II. 6 Essai de traction simple sur éprouvettes en polypropylène à température ambiante.....	38
Figure II. 7 L'étirage d'un polymère thermoplastique.....	39
Figure II. 8 Bain isothermique (Isotemp) et balance de précision de 10-3g (Mettler Toledo).....	40
Figure II. 9 Essai de traction simple sur éprouvettes en polypropylène renforcées de 30% de fibres courtes de chanvres à température ambiante.....	41
Figure II. 10 Courbes d'essai de traction simple sur des éprouvettes en polypropylène avec et sans fibres courtes.....	42
Figure II. 11 Courbes de charge-décharge sur cinq éprouvettes saines de polypropylène renforcé de 30 % de fibres courtes de chanvres à température ambiante.....	44
Figure II. 12 Courbe de comparaison entre essais de traction cyclique pendant sept cycles et un essai de traction simple sur éprouvette saine de polypropylène renforcé de 30 % de fibres courtes de chanvre à température ambiante.....	46
Figure III. 1 Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 20°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).....	51
Figure III. 2 Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 40°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).....	52
Figure III. 3 Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 60°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).....	52
Figure III. 4 Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 80°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).....	53
Figure III. 5 Courbes contraintes-déformations pour des éprouvettes immergées en eau distillée à 80°C et séchées à 80°C, comparaison avec éprouvette saine.....	54
Figure III. 6 Effet de l'humidité sur le module de Young pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.....	55
Figure III. 7 Effet de l'humidité sur la contrainte maximale pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.....	56
Figure III. 8 Effet de l'humidité sur la contrainte à rupture pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.....	56
Figure III. 9 Effet de l'humidité sur la déformation à la rupture pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.....	57

Figure III. 10 Évolutions du module de Young à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.....	57
Figure III. 11 Évolutions de la contrainte maximale à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.....	58
Figure III. 12 Évolutions de la contrainte à rupture à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.....	58
Figure III. 13 Évolutions de la déformation à la rupture à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.....	59
Figure III. 14 Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieilles en immersion à 20°C et à différents niveaux de prise d'eau.....	61
Figure III. 15 Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieilles en immersion à 40°C et à différents niveaux de prise d'eau.....	61
Figure III. 16 Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieilles en immersion à 60°C et à différents niveaux de prise d'eau.....	62
Figure III. 17 Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieilles en immersion à 80°C et à différents niveaux de prise d'eau.....	62
Figure III. 18 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 20°C.....	63
Figure III. 19 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 40°C.....	63
Figure III. 20 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 60°C.....	63
Figure III. 21 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 80°C.....	64
Figure IV. 1 Équilibre des forces sur la ligne de contact air-liquide-solide.....	68
Figure IV. 2 Mouillabilité et angle de contact.....	69
Figure IV. 3 Tranche et face d'éprouvette pour le test de mouillabilité.....	69
Figure IV. 4 Mouillabilités à température ambiante et effet de l'usure sur la mouillabilité.....	70
Figure IV. 5 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 20°C.....	71
Figure IV. 6 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 40°C.....	71
Figure IV. 7 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 60°C.....	72
Figure IV. 8 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 80°C.....	72
Figure IV. 9 Prise d'humidité en immersion en fonction du temps à différentes températures.....	73
Figure IV. 10 Évolution de perte de masse en fonction du temps du PP/Chanvre séché au four à 75°C.....	75
Figure IV. 11 Évolution de la prise de masse en immersion suivie d'un séchage à 80°C.....	76
Figure IV. 12 Variation du coefficient de diffusion en fonction de la température.....	78
Figure V. 1 Illustration de la simulation de test d'immersion avec imposition de conditions initiales et aux limites sur (1/8) d'éprouvette de dimensions (75×5×2 mm <sup>3</sup> ).....	84
Figure V. 2 Illustration de la simulation de test d'immersion en utilisant une étude symétrie et un maillage variable avec imposition de conditions initiales et aux limites.....	86
Figure V. 3 Évolution de la concentration pendant 18 jours d'immersion à 80°C, sur une coupe longitudinale d'un huitième d'éprouvette (étude symétrique, maillage variable).....	86
Figure V. 4 Distribution de la concentration le long de l'épaisseur de l'éprouvette en fonction du temps.....	87
Figure V. 5 Organigramme explicatif des démarches de simulation.....	87
Figure V. 6 Élément de référence cubique linéaire utilisé dans le maillage et la discrétisation par éléments finis.....	88

Figure V. 7 Courbe de prise de masse en fonction du temps : comparaison entre résultats expérimentaux et le modèle éléments finis à 20 °C. ....	92
Figure V. 8 Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 20°C, étude symétrique avec raffinement de maillage. ....	93
Figure V. 9 Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 40°C, étude symétrique avec raffinement de maillage. ....	93
Figure V. 10 Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 60°C, étude symétrique avec raffinement de maillage. ....	94
Figure V. 11 Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 80°C, étude symétrique avec raffinement de maillage. ....	94
Figure VI. 1 Variations du coefficient de diffusion en fonction du temps à 20°C, 40°C, 60°C et 80°C. ....	98
Figure VI. 2 Variation du paramètre ( $\omega$ ) en fonction de la température. ....	99
Figure VI. 3 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 20°C. ....	100
Figure VI. 4 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 40°C. ....	101
Figure VI. 5 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 60°C. ....	101
Figure VI. 6 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 80°C. ....	102
Figure VI. 7 Résultats expérimentaux de diffusion isotherme comparée avec le nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps pour les températures (20°C, 40°C, 60°C, 80°C). ....	102
Figure VI. 8 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 20°C. ....	104
Figure VI. 9 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 40°C. ....	104
Figure VI. 10 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 60°C. ....	105
Figure VI. 11 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 80°C. ....	105
Figure VI. 12 Résultats expérimentaux de diffusion isotherme comparée avec la simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps pour les températures (20°C, 40°C, 60°C, 80°C). ....	106

## Liste des tableaux

Tableau I. 1 Schémas de l'analogie thermique – massique.....	27
Tableau I. 2 Résidu des propriétés mécanique après immersion et séchage .....	30
Tableau I. 3 Valeurs du module élastique en traction et en flexion pour chaque type d'éprouvettes en état sec et humide.....	31
Tableau II. 1 Caractéristiques mécaniques du polypropylène sain (non vieilli).....	37
Tableau II. 2 Masse volumique et propriétés mécaniques du polypropylène .....	37
Tableau II. 3 Propriétés mécaniques du composite PP-30% de fibres courtes de Chanvre. ....	41
Tableau II. 4 Propriétés mécaniques provenant des essais de traction charge-décharge de deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30% de fibres de chanvre.....	43
Tableau II. 5 Calcul du dommage (En) pendant les cycles de chargement des deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30% de fibres de chanvre. ....	45
Tableau II. 6 Calcul du dommage (En) pendant les cycles de déchargement des deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30% de fibres de chanvre. ....	45
Tableau II.7 Propriétés mécaniques provenant des essais de traction cyclique pour deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30 % de fibres de chanvre.....	45
Tableau II. 8 Calculs du dommage après les essais de traction cyclique des deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30 % de fibres de chanvre. ....	46
Tableau III. 1 Propriétés mécaniques des éprouvettes vieilles et séchées à 80°C.....	54
Tableau III. 2 Résidu de propriétés mécaniques .....	54
Tableau III. 3 Propriétés mécaniques pour chaque température et niveau de prise d'eau .....	60
Tableau III. 4 Pourcentage de perte de propriété mécanique.....	60
Tableau IV. 1 Calcul des coefficients de diffusion initiaux et moyens .....	74
Tableau IV. 2 Évolution de la masse des éprouvettes dans un essai de séchage à 75°C. ....	74
Tableau IV. 3 Paramètres de diffusion déterminés expérimentalement à différentes températures. ....	77
Tableau V. 1 Analogie entre les paramètres de diffusion thermique et de la diffusion massique. .83	
Tableau V. 2 Les paramètres caractérisant la diffusion de l'humidité dans le matériau.....	84
Tableau V. 3 Fonctions d'interpolation et dérivées pour un élément de référence cubique linéaire .....	89
Tableau V. 4 Paramètres d'intégration de Gauss-Legendre.....	91
Tableau VI. 1 Paramètres de diffusion déterminés expérimentalement. ....	98

## NOMENCLATURE

$M_t$	: Prise de masse au temps $t$ .
$D_0$	: Coefficient initial de diffusion du milieu en $\text{mm}^2/\text{s}$ .
$D_{\text{moy}}$	: Coefficient moyen de diffusion du milieu en $\text{mm}^2/\text{s}$ .
$D$	: Coefficient de diffusion du milieu en $\text{mm}^2/\text{s}$ .
$C$	: Concentration du solvant au sein du milieu.
$x$	: Distance à partir du plan central de la plaque, suivant l'épaisseur.
$t$	: Temps de vieillissement.
$M_{\text{sat}}$	: La masse à la saturation.
$C_{\text{sat}}$	: La concentration à la saturation.
$M_0$	: La masse initiale.
$L, l, h$	: Dimensions de l'éprouvette (longueur, largeur, épaisseur).
$\Phi$	: Le flux de concentration.
$d_0$	: Indice de perméabilité (constante)
$v$	: Constante de Neumann.
$P$	: La pente initiale de la courbe de prise de masse.
$\tilde{E}$	: Le module de Young du matériau endommagé.
$E$	: Le module de Young du matériau non endommagé.
$E_n$	: Endommagement du matériau.
$E_a$	: Énergie d'activation de la diffusion en (kJ/mol).
$R$	: Constant des gaz en (J/mol K).
$T$	: Température d'essai en Kelvin.
$M(\%)$	: Prise de masse en pourcentage.
$m_f$	: Masse finale de l'éprouvette vieillie.
$m_0$	: Masse de l'éprouvette sèche.
$\sigma_{\text{max}}$	: Contrainte maximale du matériau vieilli.
$\sigma_{\text{rup}}$	: Contrainte à rupture du matériau vieilli.
$\epsilon_{\text{rup}}$	: Déformation à la rupture du matériau vieilli.
$E_0$	: Module de Young du matériau sain (non vieilli).
$E$	: Module de Young du matériau vieilli.
$\sigma_{0\text{max}}$	: Contrainte maximale du matériau sain (non vieilli).
$\sigma_{0\text{rup}}$	: Contrainte à rupture du matériau sain (non vieilli).
$\epsilon_0$	: Déformation à la rupture du matériau sain (non vieilli).
$D_x, D_y, D_z$	: Coefficient de diffusion massique dans les trois directions de l'espace.
$x, y, z$	: Les coordonnées spatiales du repère local.
$\alpha$	: La diffusivité thermique.
$k_x, k_y, k_z$	: Coefficient de diffusion thermique dans les trois directions de l'espace.
$\rho$	: Densité massique.
$C_p$	: Chaleur spécifique.
$N_i$	: Les fonctions d'interpolation.
$C_i^j$	: La concentration au temps $j$ et au nœud $i$ .
$[j]$	: Le jacobien.
$\xi, \eta, \zeta$	: Les coordonnées spatiales du repère de l'élément de référence
$w_i, w_j, w_k$	: Les poids de la méthode de Gauss Legendre.

$\pi$	: 3.14
$D_{11}$	: Coefficient de diffusion dans la direction parallèle aux fibres.
$D_{22}$	: Coefficient de diffusion dans la direction perpendiculaire aux fibres.
$D_m$	: Coefficient de diffusion de la matrice.
$D_f$	: Coefficient de diffusion des fibres.
$V_f$	: Fraction volumique des fibres.

**Abréviation :**

CFN	: Composite à fibres naturelles.
det	: Le déterminant.
MEB	: Microscope électronique à balayage.



INTRODUCTION GÉNÉRALE  
ET PROBLÉMATIQUE

## **Introduction générale**

De nos jours, une grande sensibilisation à l'environnement a contribué à augmenter l'usage des fibres naturelles comme renfort dans les composites. Ce tournant permet de diminuer l'effet de la croissance de nos besoins sur l'environnement. Les composites à fibres naturelles (CFN) sont constitués d'un renfort à base végétale possédant de bonnes caractéristiques mécaniques et d'un liant (matrice biodégradable ou non) qui sert d'élément d'enrobage au renfort. En plus d'être biodégradables et écologiques, les CFN présentent plusieurs propriétés mécaniques répondant aux exigences industrielles. D'après plusieurs études [1, 2], les CFN remplacent les composites à fibres synthétiques non renouvelables dans plusieurs domaines tels que le textile, l'agriculture, le naval, le génie civil, etc.

En effet, les propriétés mécaniques rapportées aux densités de ces fibres sont comparables à celles des fibres de verre. Les propriétés mécaniques des fibres végétales sont plus faibles par rapport à celles des fibres de verre les plus largement utilisées. Toutefois, en raison de leur faible densité, la résistance et la rigidité des fibres végétales sont comparables à celles des fibres de verre. Les CFN étant des matériaux naturels, il n'est pas facile d'assurer une reproductibilité de leurs propriétés. Ces dernières dépendent de divers paramètres tels l'origine des grains des plantes, le type de sol sur lequel elles ont été plantées, le climat, etc. Un autre problème que connaît l'exploitation des composites renforcés par des fibres naturelles est causé par l'hydrophilie des fibres naturelles, puisque les structures faites en CFN sont souvent invitées à fonctionner dans des environnements agressifs et hostiles. La température, l'humidité, les rayons ultraviolets et d'autres facteurs agissent comme agent vieillissant et causent la dégradation des pièces et la perte de leurs propriétés mécaniques. Nous pouvons facilement mesurer les propriétés initiales des CFN, mais leur évolution au cours du temps reste difficile à prévoir. De plus, le retour d'expérience relatif à ces matériaux reste limité. La maîtrise et la compréhension des interactions fibres-matrice, par une démarche scientifique, sont donc nécessaires pour améliorer la durabilité des CFN et favoriser leur utilisation dans l'industrie. Il est donc incontournable de simuler un tel environnement hostile et d'étudier le comportement des CFN dans des conditions défavorables.

## **Problématique**

Les composites à base de fibres naturelles sont particulièrement sensibles à l'humidité. L'étude de l'influence de l'humidité sur la dégradation de leurs propriétés mécaniques est primordiale. Plusieurs travaux tentent d'expliquer la physique du phénomène de diffusion d'humidité et d'évaluer son effet ainsi que celui de la température sur la perte de performances mécaniques des composites à matrice polymère. La dynamique de diffusion est principalement basée sur l'équation de Fick, dont la résolution permet de prédire la prise d'humidité dans les matériaux et d'identifier leurs paramètres de diffusion. Des techniques de caractérisation de la diffusion d'humidité dans les matériaux composites sont présentées dans ces travaux [3-9], tandis que, mesurer expérimentalement le gradient de l'humidité et/ou celui de la déformation hygroscopique dans les biocomposites reste encore une barrière difficile à dépasser.

Généralement, pour étudier le vieillissement des biocomposites, il y a beaucoup de paramètres à prendre en considération, comme l'influence des rayonnements ultraviolets[10, 11], l'intensité d'éclairage, la température et l'humidité [12, 13], etc.

Dans cette étude, on présente seulement l'influence de l'eau et la température. L'âme du présent travail est l'étude expérimentale et numérique du vieillissement en immersion d'un composite en polypropylène/chanvre. On tente de comprendre la cinétique de diffusion d'eau dans le matériau et son effet sur l'évolution des performances mécaniques. Dans le but de prédire la cinétique de diffusion d'eau en immersion à différentes températures de notre composite, un modèle conçu à partir du modèle de Fick en remplaçant le coefficient de diffusion constant par un coefficient de diffusion variable dans le temps est proposé.

Le premier chapitre fait l'objet d'une étude bibliographique non exhaustive synthétisant quelques travaux qui traitent les CFN et leur comportement. Une attention particulière est portée sur la cinétique de diffusion d'eau dans les CFN, en abordant les différents modes d'absorption et l'effet de la présence d'eau dans le composite sur l'évolution de ses propriétés mécaniques. Le deuxième chapitre présente le matériau étudié et le protocole expérimental utilisé dans le but de caractériser ce matériau et d'évaluer l'effet du vieillissement hygrothermique sur l'évolution des propriétés mécaniques. Le chapitre trois présente l'effet de la température et de l'humidité sur l'évolution des propriétés mécaniques du composite. L'effet de la température sur la cinétique de diffusion est évalué. Les données expérimentales des essais de traction simples et cycliques du matériau étudié sont également présentées dans ce chapitre. Une comparaison des propriétés mécaniques du composite à l'état vieilli en immersion avec les propriétés mécaniques du composite à l'état non vieilli est faite. Cette comparaison permet ainsi d'évaluer l'effet du vieillissement hygrothermique sur l'évolution des propriétés mécaniques du composite en question. La cinétique de la prise d'humidité et l'étude de mouillabilité du matériau étudié sont détaillées au chapitre quatre. Les données expérimentales de diffusion sont traitées également dans cette partie, où les paramètres de diffusion propres au matériau étudié sont déterminés. La modélisation et la simulation du processus de diffusion d'eau dans le composite immergé dans l'eau distillée sont détaillées au chapitre cinq. L'analogie thermique est utilisée dans la simulation de diffusion d'eau sur COSMOS/M. Une comparaison entre le modèle analytique et numérique (par éléments finis) avec les résultats expérimentaux est présentée, tout en considérant que la diffusion est de nature Fickienne. Nous avons constaté que la diffusion d'eau dans notre matériau suit une cinétique qui ne répond pas à la loi de Fick. Pour mieux représenter les résultats expérimentaux de prise de masse, un nouveau modèle de diffusion d'eau en immersion est proposé et fait l'objet du chapitre six. La différence avec le modèle de Fick classique se trouve au niveau du coefficient de diffusion. L'idée d'un nouveau modèle est venue par le remplacement du coefficient de diffusion constant dans le modèle de Fick par un coefficient de diffusion dépendant de la température et du temps. Le but est de proposer un modèle capable de prévoir la cinétique de diffusion à n'importe quelle température.

# CHAPITRE I

## RECHERCHE BIBLIOGRAPHIQUE

### ET OBJECTIFS

## **I.1. Introduction**

La diffusion d'humidité dans les CFN a plusieurs effets néfastes sur leurs propriétés mécaniques [14-19]. Nombreuses sont les tentatives et les solutions proposées dans la littérature, afin de remédier à ces problèmes. Plusieurs types de traitements peuvent être utilisés pour améliorer la résistance de ces composites à l'humidité [14-16, 20-23]. L'absorption d'humidité des biocomposites est une préoccupation majeure en particulier lorsqu'ils sont destinés à travailler dans un environnement hostile et agressif. Par conséquent, il est important d'étudier le processus d'absorption d'eau et ses effets sur les propriétés mécaniques de ces composites. Dans ce présent chapitre, une description générale du phénomène de diffusion est présentée. En premier lieu, on s'intéresse à la cinétique de diffusion d'eau dans les matériaux CFN. On va voir les différents paramètres intervenant dans le processus de diffusion d'eau dans les composites. Des modes de diffusion traités dans la littérature sont présentés. Ensuite, la modélisation du transfert de masse par analogie avec le transfert de chaleur sera étudiée. En dernier lieu, l'effet de la diffusion de particules d'eau sur l'évolution des propriétés mécaniques des composites renforcés par des fibres de chanvre est étudié.

## **I.2. Techniques de mesure de la diffusion d'humidité**

Il existe plusieurs méthodes pour estimer la quantité d'humidité absorbée par les matériaux composites [3]. La plus utilisée est la méthode gravimétrique, qui consiste à la prise de masse de l'échantillon avant et après vieillissement [4], répétée dans des intervalles de temps jusqu'à la saturation du matériau. Cette méthode présente des erreurs de mesure provoquées par le séchage des surfaces de l'échantillon après chaque pesée et nécessite d'extraire l'échantillon du milieu de vieillissement.

Stamm et Seborg [5] ont démontré que l'eau absorbée dans les matériaux cellulosiques cause des contractions volumétriques. Des mesures de densité apparente du bois et de cellulose contenant diverses quantités d'eau absorbées sont faites dans le benzène [24]. Une autre technique est basée sur la mesure de densité ou du gonflement, elle peut nous renseigner sur le mécanisme d'absorption d'eau dans les composites à matrice polymère. Les mesures de densité des polymères peuvent être effectuées à l'aide d'un pycnomètre, d'une colonne à gradient de densité ou par flottaison. Le gonflement peut être déterminé

par mesures dimensionnelles dans les trois dimensions, ou par la mesure de la contrainte de déformation dans le plan d'un film immergé dans l'eau. Deux hypothèses expliquent le mécanisme d'absorption d'eau dans les polymères à partir des mesures de densité ou de gonflement.

### **I.2.1. Diffusion de l'eau à volume constant**

L'eau est absorbée dans les vides du composite sans provoquer de gonflement de ce dernier, l'absorption s'effectue à volume constant.

### **I.2.2. Diffusion de l'eau avec gonflement**

L'eau est absorbée par le matériau composite, en provoquant son gonflement. La diffusion s'effectue avec additivité du volume de l'eau absorbée à celui du composite.

D'autres techniques sont employées pour mesurer la diffusion d'eau dans les composites. D. Rouison et al. [7], ont étudié la diffusion d'eau dans un composite en polyester renforcé par des fibres de chanvre, en utilisant la méthode d'imagerie par résonance magnétique (MRI). Cette technique permet de donner des informations sur la répartition des particules d'eau absorbées dans le plan 3D. Cette étude confirme que l'absorption d'eau par le composite est gouvernée par le mécanisme de diffusion.

Il existe plusieurs autres méthodes d'évaluation de la diffusion d'eau dans les composites. On retrouve les techniques de mesures infrarouges, mesures diélectriques et résonance magnétique nucléaire [3]. Récemment une technique se servant des mesures de déformations hydriques afin de remonter au contenu du composite en humidité est étudiée [25]. Mulle et Collombet [9] ont réalisé des mesures à cœur par des fibres optiques à réseaux de Bragg, dans le but de caractériser la diffusion d'humidité dans des composites unidirectionnels. Cette méthode consacrée auparavant à la mesure de déformations locales a permis également de suivre l'évolution de l'humidité par le biais de caractérisation des propriétés hydriques et hydromécaniques d'un composite carbone/époxy, en utilisant les fibres optiques à réseau de Bragg (RB). Le principe de la méthode est de quantifier les déformations hydriques par la mesure des longueurs d'onde pour ensuite obtenir une distribution spatiale et temporelle de l'humidité absorbée. L'avantage d'une telle méthode est le fait que les tests peuvent se faire dans le milieu humide, limitant ainsi les incertitudes de mesure. Les RB sont principalement sensibles à

la température ( $T$ ) et aux déformations axiales ( $\epsilon_{xx}$ ). La variation de longueur d'onde de Bragg ( $\Delta\lambda_B$ ) est donnée sous la forme suivante.

$$\frac{\Delta\lambda_B}{\lambda_B} = K_T \Delta T + K_\epsilon \Delta\epsilon_{xx} \quad (1)$$

$K_T$  et  $K_\epsilon$  sont des coefficients liés respectivement à la température et aux déformations mécaniques  $\Delta\epsilon_{xx}$ .

$\lambda_B$  et  $\Delta\lambda_B$  étant respectivement la longueur d'onde de Bragg et la variation dans la longueur d'onde de Bragg.

La longueur d'onde  $\lambda_B$  varie en fonction du taux d'humidité relative absorbé et en fonction de la température. Cette méthode permet de déterminer des caractéristiques locales et à cœur, telles que le taux d'humidité, le coefficient de diffusion et le taux d'expansion hydromécanique.

### I.3. Cinétique d'absorption

L'absorption est caractérisée par une prise de poids due à la diffusion des particules du solvant dans le solide au cours du temps. Cette dernière se définit comme étant un phénomène de transport de masse dû à l'existence d'un gradient de concentration du solvant vers le polymère. Fick (1855) a établi ses équations par analogie entre phénomènes de transfert de chaleur par conduction et le transfert de masse [26].

### I.4. Théorie de la diffusion

La diffusion est un phénomène de transport de matière ayant lieu en vue d'atteindre l'équilibre en concentration d'une substance dans un milieu donné. Ce phénomène est expliqué par la première loi de Fick traduisant le flux des particules induit par leur gradient de concentration [27].

$$\phi = -D\nabla C \quad (2)$$

Avec  $\phi$ ,  $D$ ,  $C$  sont respectivement le flux de particules, le coefficient de diffusion et la concentration de la substance.



### I.4.1. Deuxième Loi de Fick et modèle de diffusion Fickienne

En régime transitoire le flux en chaque point dépend du temps. La deuxième loi de Fick est donnée par l'application de la loi de continuité :

$$(\phi(x) - \phi(x + dx))dt = -\frac{\partial \phi}{\partial x} dxdt \quad (3)$$



Figure I. 1 flux de concentration dans un solide.

La variation dans le temps de la concentration est égale à la différence du flux de matière aux points  $(x)$  et  $(x + dx)$  :

$$\frac{\partial C}{\partial t} dt = (\phi(x) - \phi(x + dx))dt = -\frac{\partial \phi}{\partial x} dxdt \quad (4)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{\partial \phi}{\partial x} \quad (5)$$

$$\nabla \phi = -\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla(-D\nabla C) \quad (6)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla(-D\nabla C) \quad (7)$$

Pour un matériau isotrope

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \Delta C \quad (8)$$

### I.4.2. Exemple de plaque plane en immersion

Le modèle le plus simple et le plus répandu dans la littérature pour modéliser le processus de diffusion d'un solvant (espèce diffusante) dans un solide est donné par la loi de Fick (1855). Le gradient de concentration du solvant induit un flux  $\phi$  qui lui est proportionnel. C'est donc le moteur de la diffusion. La vitesse de diffusion est caractérisée par le coefficient de diffusion  $D$ , l'équation (8) s'écrit sous sa forme tridimensionnelle comme suit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad (9)$$

La figure (I.2) représente un solide dans un environnement humide, illustrant la direction de diffusion d'eau dans le solide à travers ses six facettes. Étant donné que l'épaisseur et la largeur du solide sont petites devant sa longueur, la diffusion a eu lieu principalement

dans la direction de l'épaisseur. Ce qui permet de considérer le problème unidimensionnel. Les concentrations initiales et les conditions aux limites de la plaque d'épaisseur  $2h$ , de largeur  $2e$  et de longueur  $2L$  sont données par :

$$C = \begin{cases} C_0 = 0 & -h < x < h & t = 0 \\ C_{sat} = C_t & \begin{cases} x = L, & x = -L \\ y = e, & y = -e \\ z = h, & z = -h \end{cases} & t \geq 0 \end{cases} \quad (10)$$

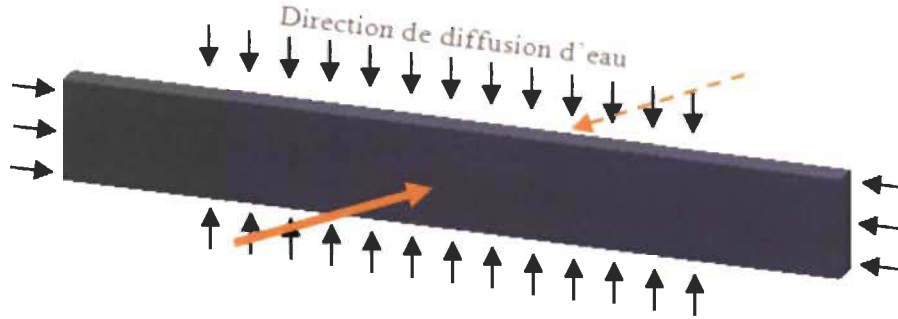


Figure I. 2 plaque mince en immersion.

L'évolution de la concentration dans le temps et l'espace est obtenue par la résolution de l'équation de Fick pour le cas unidimensionnel, par la méthode de séparation de variable [28]. L'équation (11) est utilisée dans la plupart des études décrivant l'évolution de la concentration le long de la direction de diffusion dans le matériau.

$$C(x, t) = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{n=0}^{sat} \frac{(-1)^n}{(2n+1)} \exp\left(-D \frac{(2n+1)^2}{h^2} \pi^2 t\right) \cos\left(\frac{(2n+1)\pi}{h} x\right) \quad (11)$$

La masse totale d'eau  $M_t$  dans le matériau à un instant (t) est obtenue par intégration de la variable C (concentration) sur l'épaisseur du matériau, et sur une aire A soumise au flux de concentration.

$$M_t = \int_0^h A \cdot C(x, t) dx \quad (12)$$

L'évolution de la concentration après un temps d'absorption infini est donnée par :

$$\frac{M_t}{M_{sat}} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-D \frac{(2n+1)^2}{h^2} \pi^2 t\right) \quad (13)$$

$M_{sat}$  : La masse d'eau absorbée après un temps infini.

$M_t$  : La masse d'eau absorbée après un temps donné de vieillissement.

La figure (I.3) représente une simulation du modèle de Fick, en illustrant la façon pour déterminer le coefficient de diffusion à partir des résultats expérimentaux de prise de masse. La diffusion Fickienne est ainsi caractérisée par deux paramètres :

1. Un coefficient de diffusion  $D$  indépendant du temps et de l'espace, ainsi que de la concentration en molécules d'eau, puisque nous nous plaçons dans le cas de phénomènes physiques réversibles.
2. Un seuil d'absorption d'eau asymptotique  $M_{sat}$  atteint pour un temps infini correspondant à l'équilibre et caractérisé par la valeur correspondante du gain de masse généralement exprimé en pourcentage.

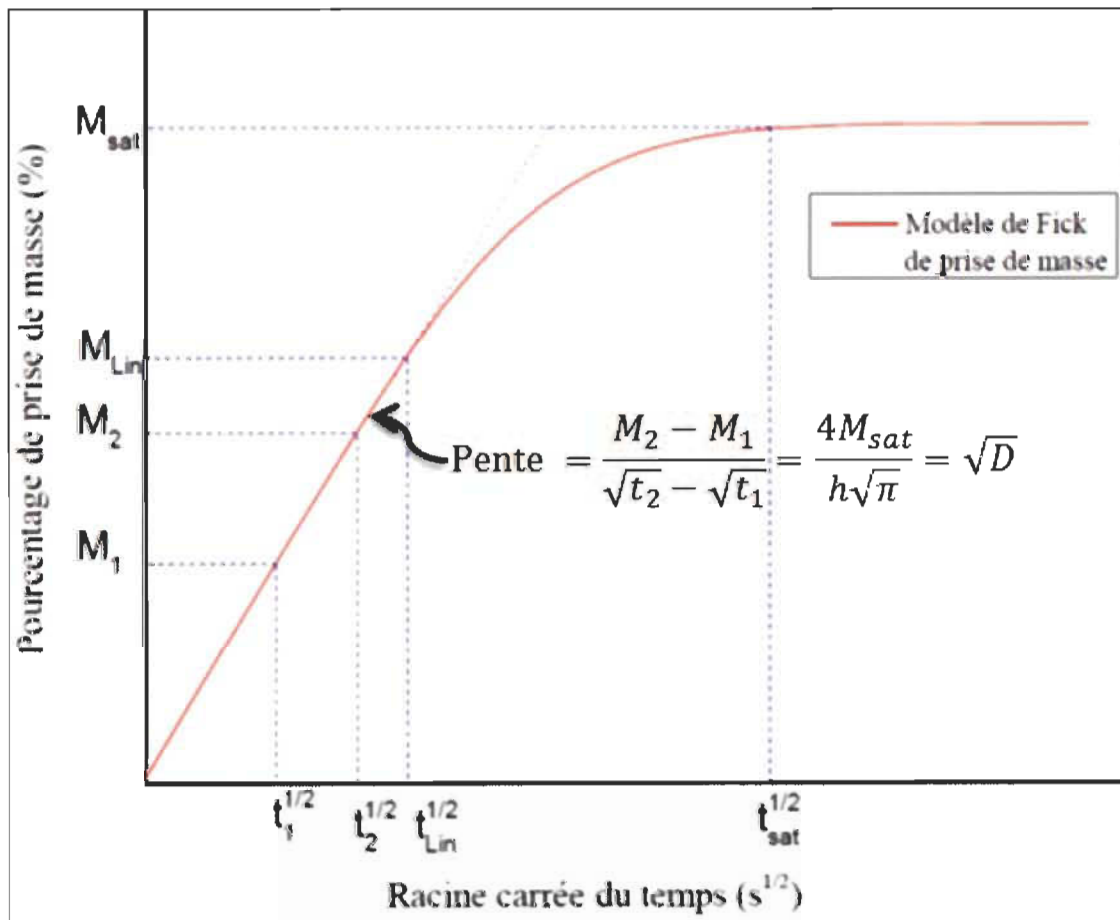
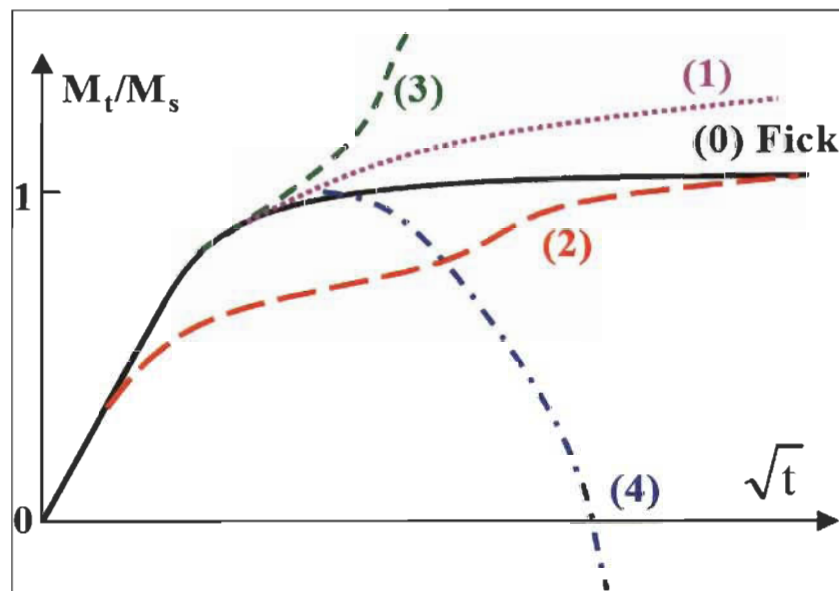


Figure I. 3 Courbes de diffusion de type Fick, tirée et adapté de [29].

### I.4.3. Modèle de diffusion non Fickienne

Dans la littérature on retrouve quatre types de diffusion non Fickienne comme le schématise la figure (I.4), en plus d'autres modes de diffusion qui seront discutés ci-dessous.

- (0) : courbe d'absorption Fickienne;
- (1) : courbe pseudo Fickienne, l'équilibre n'est jamais atteint;
- (2) : représente une cinétique du type Langmuir;
- (3) : accélération rapide d'absorption suivie d'endommagement au sein du matériau;
- (4) : présente une perte de poids du matériau après une certaine durée de vieillissement; présence d'endommagement physique, chimique ou hydrolyse du matériau.



**Figure I. 4** Courbes schématiques représentatives de quatre catégories de cinétiques d'absorption d'eau non Fickienne, tirée de [26].

Toutefois, la loi de Fick ne peut être généralisée, car certains cas de diffusion ne répondent pas à cette loi. Parmi les modèles non Fickien prenant en compte de la viscosité du polymère, des microfissures et la forme de lessivage, on retrouve le modèle de Langmuir.

#### I.4.4. Le modèle de Langmuir [30]

$$\frac{M(t)}{M_{sat}} = \left[ 1 - \frac{\gamma}{\alpha + \gamma} e^{-\alpha t} - \frac{8}{\pi^2} \frac{\alpha}{\alpha + \gamma} \sum_{r=0}^{\infty} \frac{1}{(2r+1)^2} \exp\left(\frac{-D(2r+1)^2 \pi^2}{4l^2} t\right) \right] \quad (14)$$

$\gamma$  : La probabilité des molécules piégées par unité de volume.

$\alpha$  : La probabilité des molécules mobiles par unité de volume.

Ces deux probabilités vérifient à l'équilibre quand les molécules piégées deviennent mobiles:

$$\gamma C_{sat} = \alpha C_{sat} \quad (15)$$

#### I.4.5. Le modèle à diffusivité variable dans le temps

Ce modèle peut être obtenu par analogie entre le coefficient de diffusion et le module de relaxation du modèle viscoélastique.

$$\frac{M(t)}{M_{sat}} = \left[ 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{r=0}^{\infty} \frac{1}{(2r+1)^2} \exp\left(\frac{-(2r+1)^2 \pi^2}{4l^2} \left(D_0 t + \sum_{r=1}^{\infty} D_r \left(t + \tau_r \left(e^{-\frac{t}{\tau_r}} - 1\right)\right)\right)\right) \right] \quad (16)$$

La différence de ce modèle de celui de Fick est dans le coefficient de diffusion qui est donné par une fonction décroissante dans le temps remplaçant le coefficient de diffusion constant. Un autre modèle est conçu par analogie entre le coefficient de diffusion d'humidité et le coefficient de diffusion thermique dans le matériau :

$$D_{11} = D_m(1 - v_f) + D_f v_f \quad (17)$$

$$D_{22} = D_m \left( 1 - 2\sqrt{\frac{v_f}{\pi}} \right) + \frac{D_m}{B_D} \left[ \pi - \frac{4}{\sqrt{1 - \frac{B_D^2 v_f}{\pi}}} \times \tan^{-1} \sqrt{\frac{1 - \frac{B_D^2 v_f}{\pi}}{1 + \frac{B_D^2 v_f}{\pi}}} \right] \quad (18)$$

Avec

$$B_D = 2 \left( \frac{D_m}{D_f} - 1 \right) \quad (19)$$

$$\text{Si } D_f < D_m : \quad D_{11} = D_m(1 - v_f) \quad \text{et} \quad D_{22} = D_m \left( 1 - 2\sqrt{\frac{v_f}{\pi}} \right) \quad (20)$$

$D_{11}$  : Coefficient de diffusion dans la direction parallèle aux fibres.

$D_{22}$  : Coefficient de diffusion dans la direction perpendiculaire aux fibres.

$D_m$  : Coefficient de diffusion de la matrice.

$D_f$  : Coefficient de diffusion des fibres.

$v_f$  : Fraction volumique des fibres.

#### I.4.6. Modèle de diffusion pour le cas de l'immersion

D'après Phillibert [31], l'écoulement de particules dans une direction donnée peut avoir deux provenances. L'une étant le gradient de concentration et l'autre étant l'action d'une force extérieure appelée force de transport. Sous l'effet de cette dernière, les particules se déplacent à une vitesse moyenne  $\langle v \rangle$ , donnant ainsi naissance à un flux ( $\langle v \rangle C$ ).

$$\phi = -D\nabla C + \langle v \rangle C \quad (21)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla(-D\nabla C + \langle v \rangle C) \quad (22)$$

Dans le cas d'un matériau isotrope,  $D_x = D_y = D_z = D$  :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\Delta C + \nabla(\langle v \rangle C) \quad (23)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\Delta C + \langle v \rangle \nabla C \quad (24)$$

J. Mercier [26] a proposé d'apporter une modification au modèle de Fick, afin de modéliser la cinétique d'absorption en immersion qui n'est pas purement Fickienne comme dans le cas de l'humidité relative, dans la mesure où il n'y a pas de palier de saturation, qui est une des hypothèses du modèle de Fick. Le modèle de Fick est appliqué en considérant un pseudo palier, l'absorption est considérée Fickienne jusqu'à un certain point où des dégradations apparaissent et l'absorption s'accélère. La prise de poids lors de cette deuxième phase semble linéaire en fonction de  $\sqrt{t}$ . L'auteur propose donc de modifier la loi de Fick classique en ajoutant un terme supplémentaire. Ce dernier a une forme ( $cst \times \sqrt{t}$ ) qui prend en compte cette cinétique de dégradation continue et cette prise en eau supplémentaire. Le modèle proposé pour l'absorption en immersion est donné par l'équation (25).

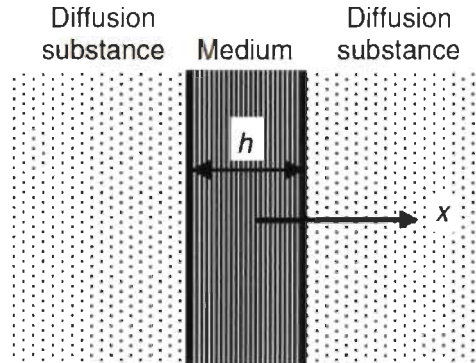
$$\frac{M(t)}{M_{sat}} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{2n+1} \exp\left(-\frac{\pi^2 D}{h^2} (2n+1)^2 t\right) + a\sqrt{t} \quad (25)$$

D'autres travaux similaires [32] ont été réalisés, ayant pour objectif d'établir la procédure pour obtenir les paramètres nécessaires permettant de quantifier la profondeur de la diffusion et sa distribution dans le composite.

La loi diffusion de Fick est appliquée à un cas de diffusion à une dimension, dans lequel l'humidité diffuse à travers les deux surfaces du composite laminé immergé dans l'eau.

Les conditions aux limites sont :

$$\begin{cases} C\left(-\frac{h}{2}, t\right) = C_{sat} \\ C\left(\frac{h}{2}, t\right) = C_{sat} \end{cases}$$



**Figure I. 5 Conditionnement dans un bain humide, échantillon exposé à deux faces [32].**

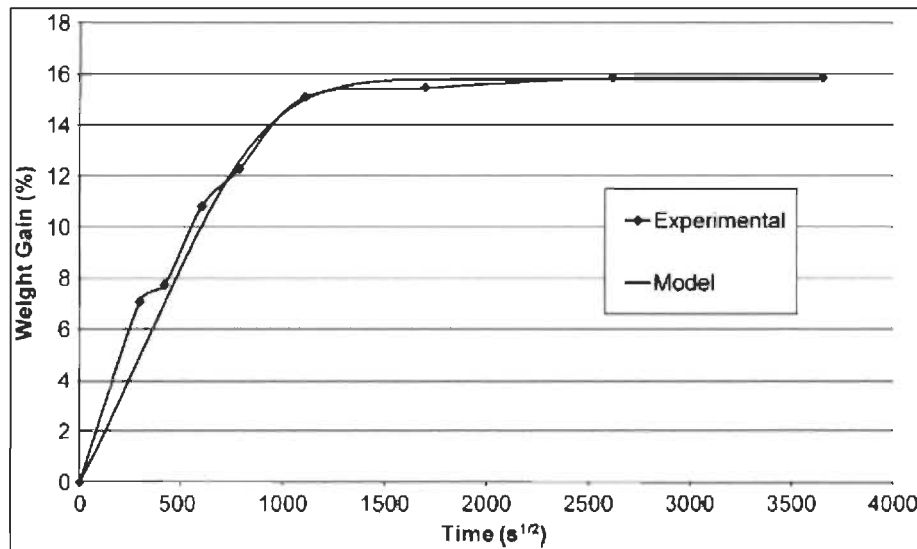
La distribution de la concentration en espace et temps pour ce cas de la figure (I.5) est exprimée par l'équation (26).

$$C(x, t) = C_{sat} \left[ 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{m=1,3,5,\dots}^{\infty} \frac{(-1)^{n-1/2}}{m} \cos\left(m\pi \frac{x}{h}\right) \exp\left(-m^2\pi^2 \frac{D}{h^2} t\right) \right] \quad (26)$$

La cinétique d'absorption est analysée dans plusieurs études traitant les composites renforcés par des fibres de chanvre, S. Panthapulakkal et M. Sain [14] ont étudié l'effet du vieillissement en immersion à différentes températures d'un composite hybride polypropylène - fibre de chanvre - fibre de verre. Plus le pourcentage de fibres de verre ajouté est grand, plus la résistance du matériau à la diffusion d'eau est améliorée. La cinétique de diffusion pour toutes les températures est de nature Fickienne. De petites déviations pour les hautes températures ont été observées. D'après les auteurs cela peut être expliqué par la naissance de microfissures sur la surface et un début de dissolution des molécules légères des fibres. L'auteur de la présente étude confirme que la prise de masse à la saturation ne dépend pas de la température contrairement au coefficient de diffusion. Chen et al. [15] ont récemment étudié l'effet du traitement de fibre de chanvre par le méthacrylate d'isocyanatoéthyle sur les propriétés mécaniques et la cinétique d'absorption d'eau du composite polyester non saturé renforcé par des fibres de chanvre. Le composite renforcé par des fibres de chanvre traitées présente une meilleure résistance à la diffusion d'eau. La diffusion d'eau dans le matériau suit le modèle de Fick pour les

basses températures et présente un écart pour les tests opérés à 100 °C. Le modèle de Fick sous sa forme tridimensionnel est modélisé par la méthode des différences finies pour représenter les résultats expérimentaux du vieillissement en immersion du composite en polyester non saturé renforcé par des fibres de chanvre [19].

La figure (I.6) présente une comparaison entre les résultats expérimentaux de diffusion d'eau en immersion du polyester non saturé – fibre de chanvre et le modèle de Fick modélisé par la méthode des différences finies.



**Figure I. 6** Comparaisons expérimentales et théoriques du comportement d'absorption d'eau par le composite polyester non saturé – chanvre, tirée de[19].

### I.5. Modélisation par analogie du transfert thermique – massique

La modélisation du phénomène de diffusion d'humidité dans les polymères en particulier les emballages en plastique des composants électroniques est abordée dans le travail de Yoon [33]. L'auteur, présente deux modes d'analogie, la première consiste à une analogie directe par comparaison directe des équations gouvernantes des deux processus. Ce type d'analogie est valide uniquement pour un système constitué d'un seul matériau. La seconde méthode est l'analogie normalisée, elle peut être étendue pour des systèmes multi matériaux si les conditions thermiques sont isothermes. Les deux équations gouvernant le transfert thermique et massique sont données par les équations (27) et (28) respectivement.

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \nabla^2 T \quad (27)$$



$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \nabla^2 C \quad (28)$$

La comparaison directe des équations (27) et (28) permet d'établir l'analogie thermique massique décrite dans le tableau (I.1).

**Tableau I. 1** Schémas de l'analogie thermique – massique, tiré de [33].

	Transfert de chaleur	Analogie directe	Analogie Normalisée
Variables	Température T	Concentration C	Concentration normalisée $\phi$
Densité	$\rho$	1	1
Conductivité	k	D	$D \times S$
Chaleur spécifique	Cp	1	S

L'analogie normalisée peut être obtenue en considérant que le système matériau/polymère suit la loi de Henry sous la forme de l'équation (29). Cette analogie est prise en compte dans le cas où il y a présence de diffusion d'eau sous sa forme gazeuse, comme c'est le cas du vieillissement en humidité relative.

$$C_{\text{sat}} = S P_{\text{vp}} \quad (29)$$

S : La solubilité en (kg/m<sup>3</sup> Pa).

P<sub>vp</sub> : La pression de vapeur ambiante en (Pa).

Cette pression de vapeur peut être exprimée en fonction de l'humidité relative (RH(%)) et la pression de vapeur saturante (P<sub>vp</sub><sup>sat</sup>), sous la forme de l'équation (30).

$$P_{\text{vp}} = \text{RH}\% \times P_{\text{vp}}^{\text{sat}} \quad (30)$$

La normalisation de la concentration peut se faire par la variable  $\phi$  définie comme l'activité de la matière diffusante.

$$\phi = \frac{C}{S} \quad (31)$$

L'analogie concernant la concentration normalisée est valable seulement si la solubilité (S) est indépendante du temps, et est uniforme dans le milieu diffusant. Du moment que la solubilité dépend de la température et peut être déterminée par la loi d'Arrhenius, la température doit être dans ce cas uniforme et indépendante du temps.

## I.6. Paramètres influant sur le processus de diffusion

### I.6.1. Taux d'humidité relative

Plusieurs travaux ont confirmé que le niveau de saturation  $M_s$  dépend du degré d'humidité relative (HR%). La vitesse de diffusion caractérisée par le coefficient de diffusion (D) ne dépend pas du taux d'humidité. La comparaison entre les coefficients de diffusion en immersion et en humidité relative montre que le coefficient de diffusion ne dépend pas du taux d'humidité pour une même température [26]. La prise de masse est exprimée en fonction de l'humidité relative sous la forme de l'équation (32).

$$M_s = a(\text{HR}\%)^b \quad (32)$$

*a et b des constantes,  $b \approx 1$  pour les composites,  $1.3 \leq b \leq 1.8$  pour les résines*

### I.6.2. La température

Plusieurs travaux [3, 13, 26, 34-36] confirment que le processus de diffusion est thermiquement activé et que le coefficient de diffusion d'eau est très sensible à la température. L'augmentation de cette dernière engendre des augmentations dans la vitesse d'absorption. La dépendance du coefficient de diffusion (D) de la température (T) est donnée par l'équation d'Arrhenius.

$$D = d_o \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (33)$$

Dhakal et al. [4] ont étudié l'effet de la température sur la prise en humidité et par conséquent sur les propriétés mécaniques du composite en polyester non saturé renforcé par des fibres de chanvre. L'auteur confirme que plus la température augmente plus la vitesse pour atteindre le plateau de saturation augmente, on atteint la saturation plus vite à 100 °C qu'à 23 °C. D'autre part, l'augmentation du pourcentage des fibres ajoutées dans le composite conduit à l'augmentation du pourcentage de prise de masse à la saturation. Ce phénomène est peut-être lié à la nature hydrophile des fibres de chanvre qui vient

augmenter l'hydrophobicité du composite. L'exposition du composite à l'humidité provoque des microfissures dans la matrice thermodurcissable, ces dernières sont causées par le gonflement des fibres de chanvre.

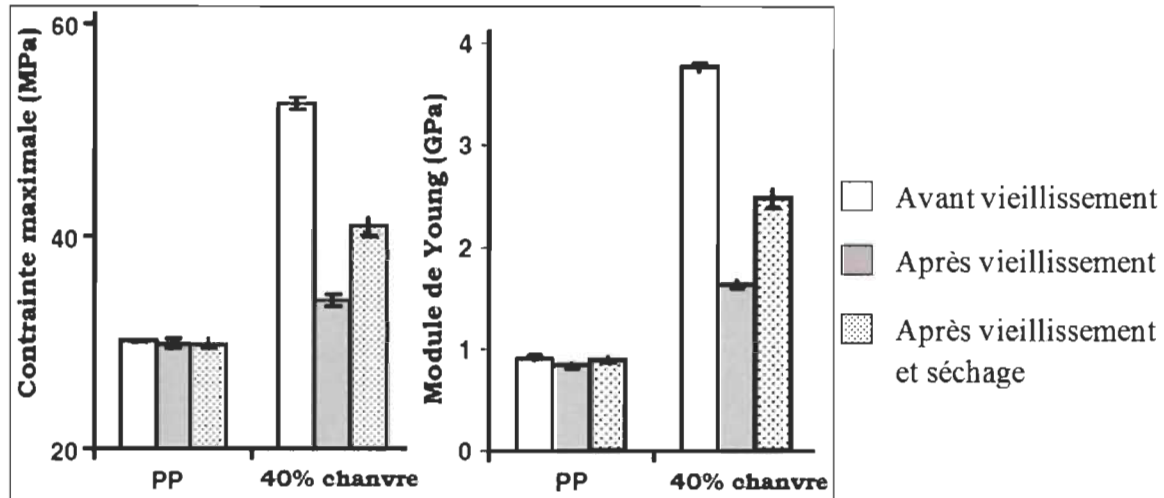
- La forte teneur en cellulose dans les fibres de chanvre (74 %) favorise la pénétration d'eau dans l'interface fibre/matrice à travers des microfissures.
- L'eau diffuse par capillarité et attaque activement la matrice et finit par provoquer le décollement fibre-matrice.
- Le modèle d'absorption de l'eau de ces composites à température ambiante suit le modèle de Fick, tandis qu'à des températures élevées le comportement est non Fickien, la dégradation induite par l'humidité est plus importante dans ce cas.

### **I.7. Influence d'humidité sur le comportement mécanique des CFN**

L'action d'un environnement humide sur la corrosion des métaux est connue depuis très longtemps, mais on a toujours moins compris son effet sur les matériaux polymères [37]. Plusieurs travaux ont été réalisés dans le but d'expliquer l'effet d'un environnement humide sur les propriétés mécaniques des composites. H. Dhakal et al. [4] ont étudié l'effet d'absorption d'eau en immersion sur les propriétés mécaniques du composite polyester non saturé renforcé par des couches de fibres de chanvre. Des tests d'absorption dans un bain d'eau déminéralisée à 25 °C et 100 °C pour des durées différentes d'immersion ont été réalisés sur des échantillons UPE-chanvre. Les propriétés de traction et de flexion des échantillons vieilliss ont été comparées à celle des échantillons non vieilliss. L'influence de la fraction volumique des fibres sur la prise d'humidité a été étudiée. Les résultats ont montré que plus la fraction volumique des fibres de chanvre ajoutées augmente plus la masse absorbée à la saturation augmente et plus le coefficient de diffusion augmente. La cinétique de diffusion est classifiée de nature Fickienne.

Récemment, Asim Shahzad [19], présente une étude ayant pour but l'évaluation de l'effet du vieillissement en immersion dans l'eau distillée sur les propriétés mécaniques d'un composite stratifié polyester /fibres de chanvre. L'auteur confirme que le matériau perd ses propriétés mécaniques immédiatement après que l'eau soit diffusée dans le matériau. Le module de Young chute de 60 % et la contrainte maximale diminue de 35 % après 3700 heures d'immersion. La perte des performances mécaniques du composite est expliquée par la plastification de la matrice et la chute de rigidité des fibres suite aux tests

d'immersion. D'autres travaux [14] ayant pour but d'étudier l'effet du vieillissement en immersion du polypropylène renforcé par des fibres de chanvre et de verre, la figure (I.7) illustre l'effet de la prise d'eau et le séchage sur la contrainte maximale et le module de Young. On constate une chute de 56.5 % pour la contrainte maximale et 35.2 % en terme de module de Young.



**Figure I. 7** Effets du vieillissement en immersion sur les performances mécaniques en traction du polypropylène/40% fibres de chanvre/0% fibres de verre. Adaptée de [14].

Le tableau (I.2) résume les résidus en termes de contrainte maximale en traction et du module de Young du composite hybride en polypropylène renforcé avec des fibres de chanvre et de verre. Le cas qui nous intéresse c'est celui du matériau ayant 0 % d'ajout de fibres de verre, où l'on constate qu'après séchage du matériau il y a une récupération partielle des propriétés mécaniques.

**Tableau I. 2** Résidu des propriétés mécanique après immersion et séchage. Tiré de [14]

Matériau	Module de Young (%)		Contrainte maximale (%)	
	humide	séchée	humide	séchée
Polypropylène (PP)	92.3	97.8	99.3	99.3
50 % PP, 40 % chanvre, 0 % verre, 5 % agent de couplage	43.5	65.8	64.8	77.8

La présence de l'eau dans le matériau apporte des altérations sur les performances du composite. Le tableau (I.3) présente l'effet du vieillissement en immersion du composite polyester - chanvre sur le module en traction et en flexion. Le module en traction est

affecté par l'absorption d'eau, par contre le module élastique en flexion n'est pas affecté par l'absorption d'humidité.

**Tableau I. 3** Valeurs du module élastique en traction et en flexion pour chaque type d'éprouvettes en état sec et humide, tiré de [4].

Éprouvette fibres de chanvre en %	Module élastique en traction (GPa)		Module élastique en flexion (GPa)	
	sec	humide	sec	humide
0 (UPE seule)	0.56	0.60	5.51	5.81
10(2couches)	0.72	0.64	4.20	5.76
15(3couches)	1.0	0.62	5.34	6.08
21(4couches)	1.22	0.62	7.30	6.06
26(5couches)	1.27	0.68	6.49	8.05

Par ailleurs, cette étude confirme que la prise en humidité augmente avec l'accroissement de la fraction volumique des fibres. Cette dernière conduit à l'augmentation des vides et des structures celluloses, engendrant ainsi des chutes considérables des propriétés mécaniques en traction et en flexion, causées par la dégradation de l'interface fibre-matrice.

A. Stamboulis et al. [29] ont montré que la résistance en traction des composites à fibres de lin non traitées est plus altérée par l'humidité. Il a été montré que le traitement des fibres contribue à la baisse de la prise d'humidité et par conséquent ces effets sur les performances mécaniques du composite. Des travaux similaires sont réalisés [38], ayant pour objectif d'étudier l'influence de l'humidité contenue dans les fibres de lin sur le comportement mécanique des composites en polypropylène, ainsi que d'analyser la cinétique d'absorption d'humidité et d'évaluer l'effet de cette dernière sur les performances mécaniques des composites en PP-fibre de lin. Une augmentation de 86 % en humidité relative provoque une perte de 56 % de la valeur du module de Young. La présence de l'agent de couplage (maléique anhydride), contribue à la hausse de ce dernier. Par contre, le module de Young en flexion et la résistance à la traction ne semblent pas être affectés ni par l'humidité contenue dans les fibres ni par l'ajout de l'agent de couplage. La contrainte limite en flexion est légèrement affectée par l'humidité contenue dans les fibres, mais l'augmentation du pourcentage de l'agent de couplage entraîne une hausse de la contrainte limite en flexion.

## I.8. Objectifs

L'objectif principal de ce travail est de mettre au point un outil numérique permettant de prédire la cinétique d'absorption d'eau d'un composite de matrice thermoplastique renforcée par des fibres naturelles. Cet outil est en mesure de nous donner suffisamment d'information sur la vitesse et le temps nécessaire pour atteindre un seuil donné de prise d'eau pour notre matériau dans le cas de l'immersion et pour n'importe quelle température. Dans ce travail, la diffusion d'eau dans un matériau en polypropylène renforcé à 30 % en fraction volumique de fibres de chanvre est analysée expérimentalement et numériquement sous différentes conditions de vieillissement hygrothermique. La prise en compte de la diffusion d'humidité en immersion est étudiée. Un bain isothermique est utilisé pour des simulations à différentes températures (20, 40, 60 et 80 °C). Les propriétés mécaniques sont mesurées et l'endommagement est quantifié. La détermination de la cinétique d'absorption d'eau du matériau étudié est effectuée par un suivi journalier de la prise de poids en fonction du temps.

Les effets de la température et la diffusion d'eau sur l'endommagement du matériau sont également étudiés et font l'objet du chapitre (II). L'évolution de différentes propriétés mécaniques en fonction du vieillissement subi sera mise en évidence et quantifiée lors d'essais expérimentaux de traction simple et cyclique.

La loi de diffusion de chaleur classique de Fourier est utilisée pour établir une analogie avec la loi de Fick, décrivant le processus de diffusion de masse dans le matériau étudié. La cinétique de diffusion d'eau dans notre matériau est étudiée numériquement par un modèle éléments finis. Ce dernier est comparé à un modèle construit par la résolution analytique des équations gouvernant le phénomène. Dans une seconde étape, une validation expérimentale des prédictions numériques est entreprise et sera l'objectif du chapitre (V). Un nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps, décrivant le phénomène de diffusion dans le composite est proposé au chapitre (VI).

## CHAPITRE II

# MATÉRIAU, PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL ET EFFET DU RENFORCEMENT EN FIBRES

## II.1 Introduction

Ce chapitre traite l'étude expérimentale du comportement mécanique d'un biocomposite en polypropylène renforcé par des fibres courtes de chanvre. Des essais de traction simple, essais de charge-décharge et essais de traction cyclique sont menés pour cette fin. L'étude du comportement des éprouvettes en polypropylène seul a été opérée dans le but de mettre en évidence l'effet renforçant de l'ajout des fibres naturelles. Celles-ci procurent au matériau plus de rigidité et des propriétés mécaniques plus élevées.

Rapport-gratuit.com  
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES 

## II.2 Description du matériau et des éprouvettes de l'essai

Généralement, les essais de traction permettent de déterminer qualitativement si un matériau est fragile ou ductile, rigide ou souple. Ils permettent aussi de quantifier certaines propriétés mécaniques telles que le module d'élasticité, la résistance maximale ou la contrainte et l'allongement à la rupture en traction. Dans ce rapport, nous présentons des essais de traction simples, des essais de charge-décharge et des essais de traction cyclique. Ces essais ont été menés dans le but d'étudier le comportement d'éprouvettes en composite thermoplastique constitué d'une matrice en polypropylène de source hydrocarbure, matrice thermoplastique (polypropylène), renforcée par une fraction volumique de 30 % de fibres courtes de source végétale provenant du chanvre.

Le polypropylène présente dans un certain nombre de cas des propriétés mécaniques de qualité supérieure comparativement au polyéthylène. Il est léger, plus résistant, plus rigide, il montre une meilleure résistance au fluage, présente moins d'usures et moins glissants. Cependant, il est plus fragile que le polyéthylène, surtout à de faibles températures. La figure (II.1) montre la structure chimique du polypropylène [39].

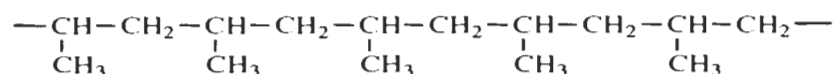
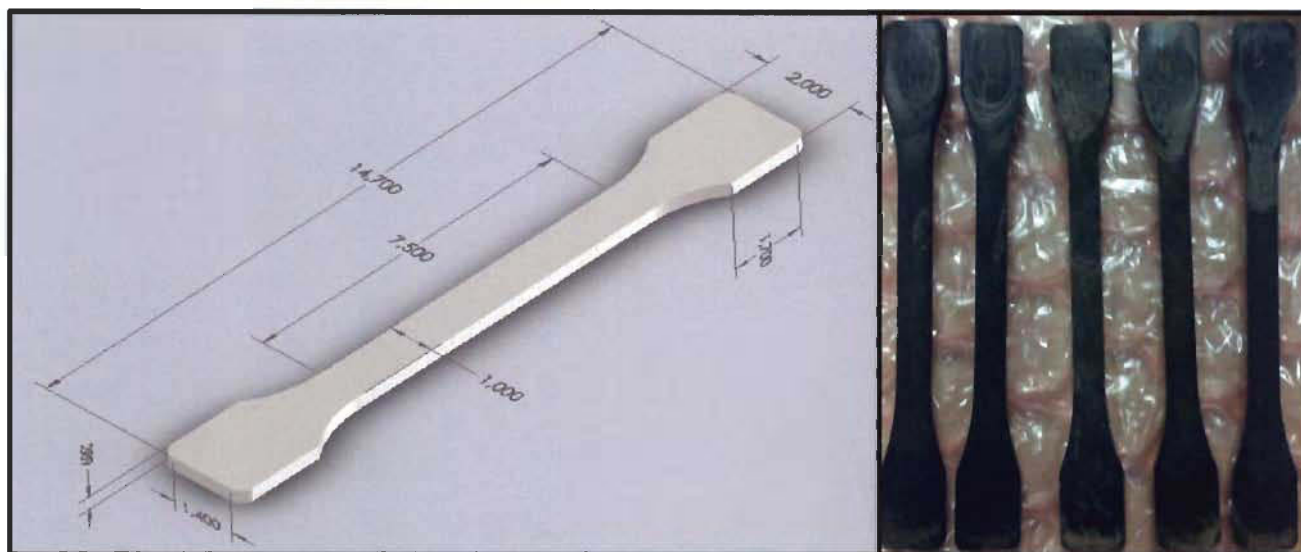


Figure II. 1 Formule chimique du polypropylène.

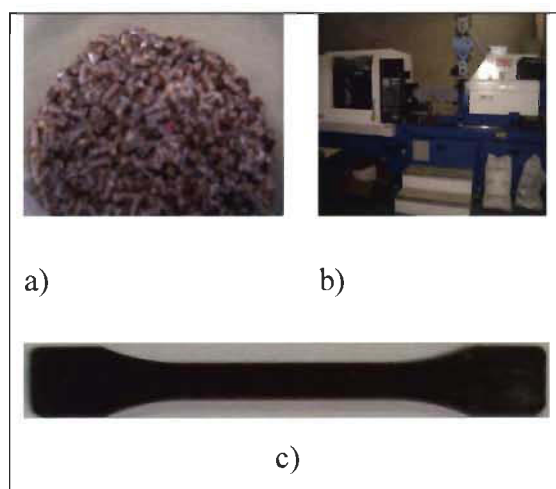
Dans la littérature, on retrouve que le polypropylène est divisé en deux familles : les homopolymères et les copolymères, leur température de fusion varie entre 161-165 °C et leur densité est de 0.9 g/cm<sup>3</sup>.



Les éprouvettes testées ont une forme haltère, respectant la norme : ISO (294-1) de dimensions (150, 10, 4 mm<sup>3</sup>). Les figures (II.2 et II.3) montrent les dimensions et la forme des éprouvettes de l'étude.



**Figure II. 2** Description des éprouvettes de l'essai, éprouvettes polypropylène renforcées à 30 % en fraction volumique de fibres courtes de chanvres, fabriquées et moulées à l'INSAT.



**Figure II. 3** a) Granules en polypropylène - 30% de fibres de chanvre.  
b) Machine d'injection.  
c) Éprouvette sous forme d'haltère PP/Chanvre, fabriquées et moulées à l'INSAT.

### II.3 Dispositif expérimental

Les essais de traction ont été réalisés en utilisant une machine de traction de type INSTRON représentée sur la figure (II.4), équipée d'une cellule de charge d'une capacité maximale de 150 KN. Plusieurs paramètres peuvent être acquis simultanément (temps, charge appliquée, déformation). Les éprouvettes ont été placées entre les mors de la

machine de traction tout en prenant soin de bien les aligner verticalement. Un extensomètre est placé sur la partie utile de l'éprouvette permettant la mesure des déformations. L'acquisition des données passe par l'utilisation d'extensomètre et de matériel informatique.



Figure II. 4 Machine électromécanique d'essais de traction INSTRON.

## II.4 Résultats expérimentaux

### II.4.1 Polypropylène seul

Un essai de traction simple a été mené à température ambiante sur deux éprouvettes en polypropylène sans renfort. Un pilotage en déplacement et fait à deux vitesses d'avance constantes 1 mm/min et 2 mm/min pour les deux éprouvettes respectivement. Le tableau (II.1) résume les résultats obtenus pour les deux éprouvettes, la déformation à la rupture n'a pas pu être enregistrée, car la machine de traction a atteint sa limite de déplacement.

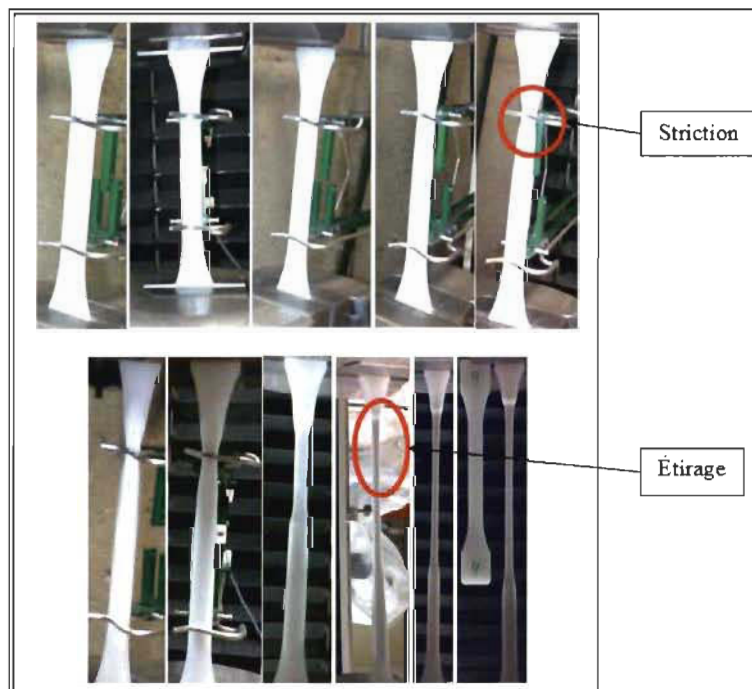
**Tableau II. 1** Caractéristiques mécaniques du polypropylène sain (non vieilli).

Éprouvette en polypropylène	Module de Young $E$ (GPa)	Contrainte maximale $\sigma_{max}$ (MPa)	Limite élastique $Re_{0,2}$ (MPa)	Vitesse d'avance (mm/min)	Déformation à la rupture $\epsilon_R$ (%)
Éprouvette 1	0,99	-	20	1	-
Éprouvette 2	0,99	-	21	2	-

Le tableau (II.2) représente les propriétés mécaniques du polypropylène prises de la littérature [40]. Les résultats obtenus expérimentalement, présentés dans le tableau (II.1), s'avèrent concorder avec les propriétés trouvées dans la littérature tableau (II.2).

**Tableau II. 2** Masse volumique et propriétés mécaniques du polypropylène, tiré de [40].

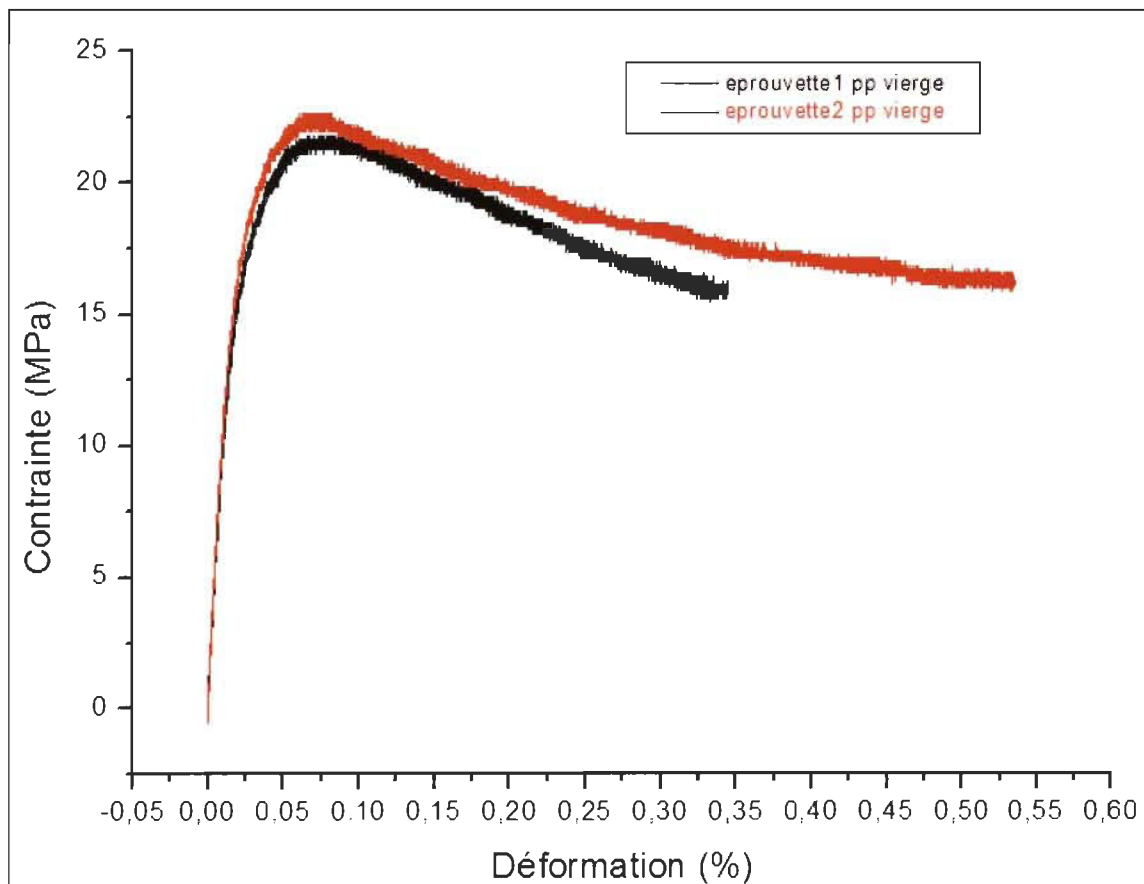
Matériau	$\rho$ $cm^3$	$E$ (GPa)	$\sigma_{max}$ (MPa)	$Re_{0,2}$ (MPa)	$\epsilon_R$ (%)
Polypropylène	0,9	0,9	35	20-35	-



**Figure II. 5** Essai de traction sur éprouvette de polypropylène saine (non vieillie).

L'analyse des résultats est faite en se basant sur l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation, figure (II.6). Le comportement du matériau passe par plusieurs étapes [41], ces étapes sont illustrées dans la figure (II.7).

- a. Une première phase élastique linéaire jusqu'au point (A) caractérisée par un module élastique  $E$ ,
- b. Une deuxième phase (AB) où la courbe perd sa linéarité initiale traduisant le passage du matériau dans la phase viscoélastique.
- c. Un seuil plastique, le point B c'est la limite d'élasticité du matériau.
- d. La phase BC est caractérisée par l'apparition d'une striction correspondant à un début de plasticité.
- e. La phase d'étirage (CD), un palier horizontal de déformation caractérisé par une propagation de la striction le long de l'éprouvette (figure II.5). Cette zone amincie est caractérisée par un réarrangement des liaisons faibles (Van der Waals). La figure (II.7) donne un schéma du réarrangement des chaînes moléculaires.
- f. Le point R présente la zone de rupture.



**Figure II. 6** Essai de traction simple sur éprouvettes en polypropylène à température ambiante.

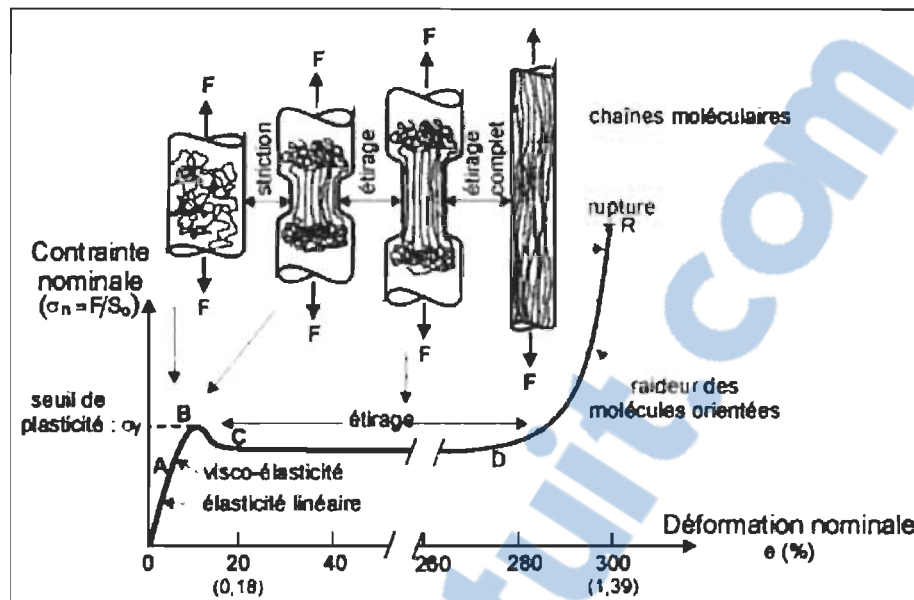


Figure II. 7 L'étirage d'un polymère thermoplastique [4].

## II.4.2 Composite polypropylène/Chanvre

### II.4.2.1 Protocole expérimental

La suite du travail s'intéresse à l'étude expérimentale du vieillissement hygrothermique d'un biocomposite à matrice thermoplastique (polypropylène) renforcée à 30 % de fraction volumique de fibres courtes de chanvre. Le matériau est sous forme d'éprouvettes de traction (haltère) de dimensions (150mm×40mm×10mm) figure (II.2), fabriquées selon la norme (ISO 294-1) par injection de granules composée de polypropylène et de fibres courtes de chanvre. Des tests de traction simples et cycliques ont été opérés selon les normes (ASTM D638 et ISO 527-2) dans les conditions normales de laboratoire en température et humidité. Avant de procéder aux essais de traction simple et cyclique, dix (10) éprouvettes sont mises au four à une température de 75 °C pendant une durée de 110 heures pour éliminer le résidu d'eau dans le matériau, la perte de masse est mesurée par une balance électronique d'une précision de  $10^{-3}$ g, jusqu'à ce que la masse des éprouvettes reste constante. Un coefficient de diffusion (désorption) de  $11 \times 10^{-4} \text{mm}^2/\text{s}$  est enregistré pour toutes les éprouvettes testées. En parallèle, des essais de vieillissement en immersion sont opérés. Ces éprouvettes ont été séchées au four à 75°C pendant 24 heures pour éliminer l'humidité résiduelle se trouvant dans le matériau, vieilles en suite en immersion dans l'eau distillée à différentes températures (20, 40, 60 et 80 °C) dans un bain isothermique de marque ISOTEMP, pouvant aller jusqu'à 100°C figure (II.8). Les essais

sont réalisés selon la norme (ASTM D570-98). Pour chaque température, huit éprouvettes sont utilisées pour suivre l'évolution de la prise de masse, des pesées ont été opérées de façon journalière sur une balance de précision de  $10^{-3}$ g (figure (II.8)) après avoir essuyé les particules d'eau sur les éprouvettes. L'effet du pourcentage de prise d'eau sur l'évolution de différentes propriétés mécaniques du matériau est évalué avec des tests de traction simples et cycliques effectués sur deux éprouvettes à chaque niveau de prise d'eau jusqu'à ce que la saturation du matériau soit atteinte. Dans le but de voir la réversibilité de la prise d'eau, six éprouvettes sont mises au four pendant 24 heures à une température de  $75^{\circ}\text{C}$  pour enlever les particules d'eau résiduelle que le matériau a absorbée depuis sa mise en œuvre. Le poids des éprouvettes est ainsi enregistré comme le poids initial à leur sortie du four, les éprouvettes sont ensuite immergées dans l'eau distillée à une température de  $80^{\circ}\text{C}$  pendant 20 jours. Une fois la saturation atteinte, trois éprouvettes ont été testées en traction simple pour évaluer leurs propriétés mécaniques. Les trois éprouvettes restantes sont mises au four à une température de  $80^{\circ}\text{C}$  pour subir un test de séchage jusqu'à ce que les éprouvettes reprennent leur poids initial. À ce niveau, les trois éprouvettes séchées au four subissent des tests de traction simple pour faire une comparaison avec les performances mécaniques des éprouvettes contenant de l'eau à l'état saturé. La figure (II.8) représente le bain isothermique et la balance sur laquelle les mesures de prise de masse sont réalisées.



**Figure II. 8** Bain isothermique (Isotemp) et balance de précision de  $10^{-3}$ g (Mettler Toledo).

#### II.4.2.2 Essai de traction simple

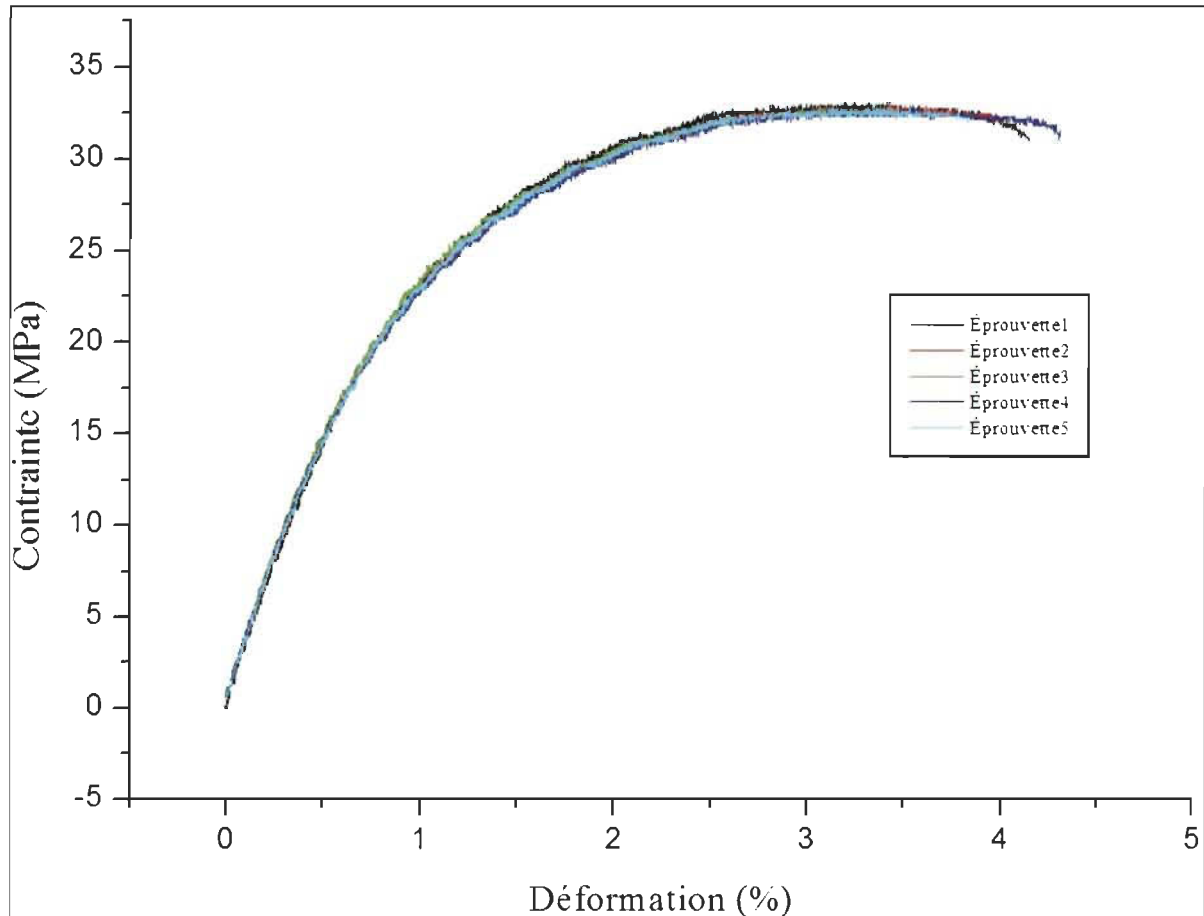
Afin de déterminer les propriétés mécaniques du matériau (PP - 30% Chanvre), des tests de traction sont menés sur 5 éprouvettes du matériau étudié parmi les dix (10) éprouvettes séchées au four. Les essais sont réalisés sur une machine de traction INSTRON à une vitesse d'avance de 2mm/min, ces éprouvettes serviront d'éprouvettes témoins pour le reste de l'étude.

Le tableau (II.3) nous renseigne sur les différentes propriétés mécaniques du composite testé, on atteint un module élastique moyen de l'ordre de 3.128 GPa, et une contrainte maximale moyenne de 32.94 MPa.

**Tableau II. 3** Propriétés mécaniques du composite PP-30% de fibres courtes de Chanvre.

	E (GPa)	$\sigma_{max}$ (MPa)	$\sigma_{rup}$ (MPa)	R <sub>0,2</sub> (MPa)	$\epsilon_{rup}$ (%)
épreuve1	3,084	33,1	30,93	22,5	4,15
épreuve2	3,151	33,01	31,93	22	4
épreuve3	3,09	32,87	32,18	20	3,51
épreuve4	3,159	32,86	31,24	22	4,31
épreuve5	3,159	32,86	31,91	21	3,83
moyenne	3,129	32,94	31,638	21,5	3,96
écart type	0,034	0,098	0,472	0,894	0,276
variance	0,001	0,010	0,223	0,800	0,076

La figure (II.9) montre la contrainte en fonction de la déformation pour des essais de traction monotone procédés sur les cinq (5) éprouvettes mises au four pour élimination d'humidité résiduelle. Elle montre une très bonne répétabilité.

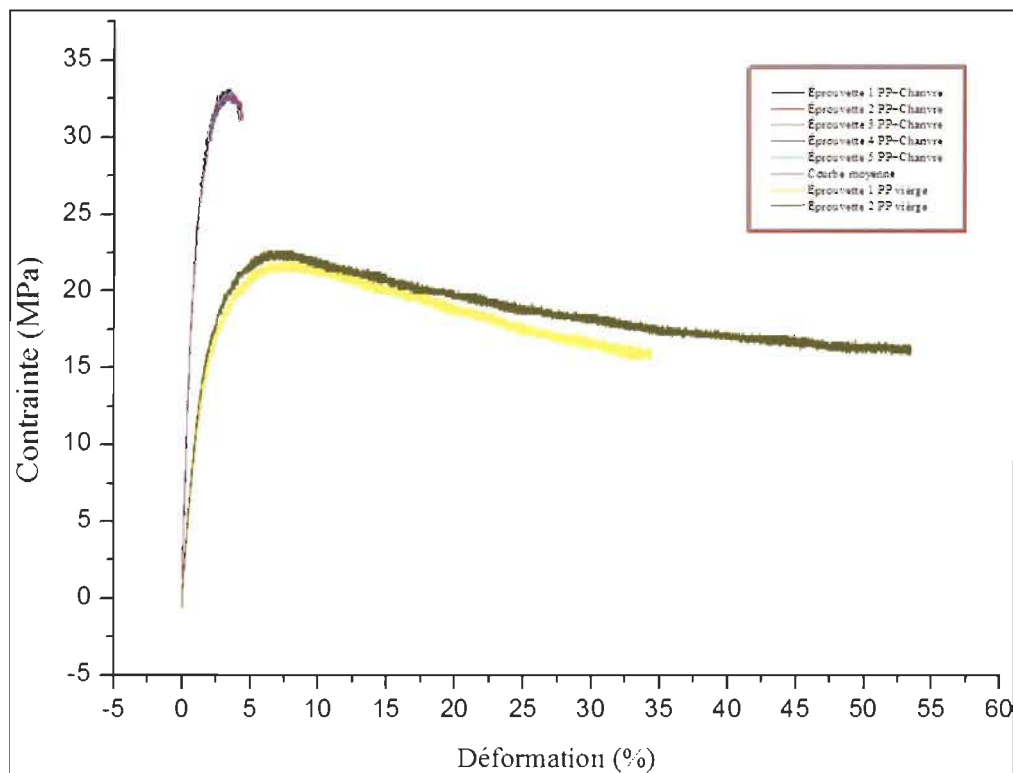


**Figure II. 9** Essai de traction simple sur éprouvettes en polypropylène renforcées de 30% de fibres courtes de chanvres à température ambiante.



Les courbes de la figure (II.10) présentes une comparaison ente le comportement statique des éprouvettes en polypropylène renforcées et non renforcées par des fibres courtes de chanvres, nous dénotons trois observations :

1. Une amélioration du module de Young d'un facteur de 3.15 est enregistrée (on passe de 0,99 GPa à 3,128 GPa). On peut donc conclure que l'ajout des fibres de chanvre augmente la rigidité de la matrice en polypropylène vierge.
2. Une baisse importante de la déformation à la rupture peut être facilement constatée sur la figure (II.10) même si la rupture n'est pas atteinte pour les éprouvettes du polypropylène. Cela peut être expliqué encore une fois par l'effet rigidifiant du renfort et que l'ajout de fibre végétale donne au matériau un comportement rigide et moins élastique.



**Figure II. 10** Courbes d'essai de traction simple sur des éprouvettes en polypropylène avec et sans fibres courtes.

#### II.4.2.3 Essai de charge-décharge

Un essai de traction avec des cycles charge-décharge est réalisé sur cinq (5) éprouvettes. Une incrémentation de la contrainte de 4 MPa se fait après chaque cycle jusqu'à la contrainte maximale. Les résultats obtenus sont représentés dans le tableau (II.4).

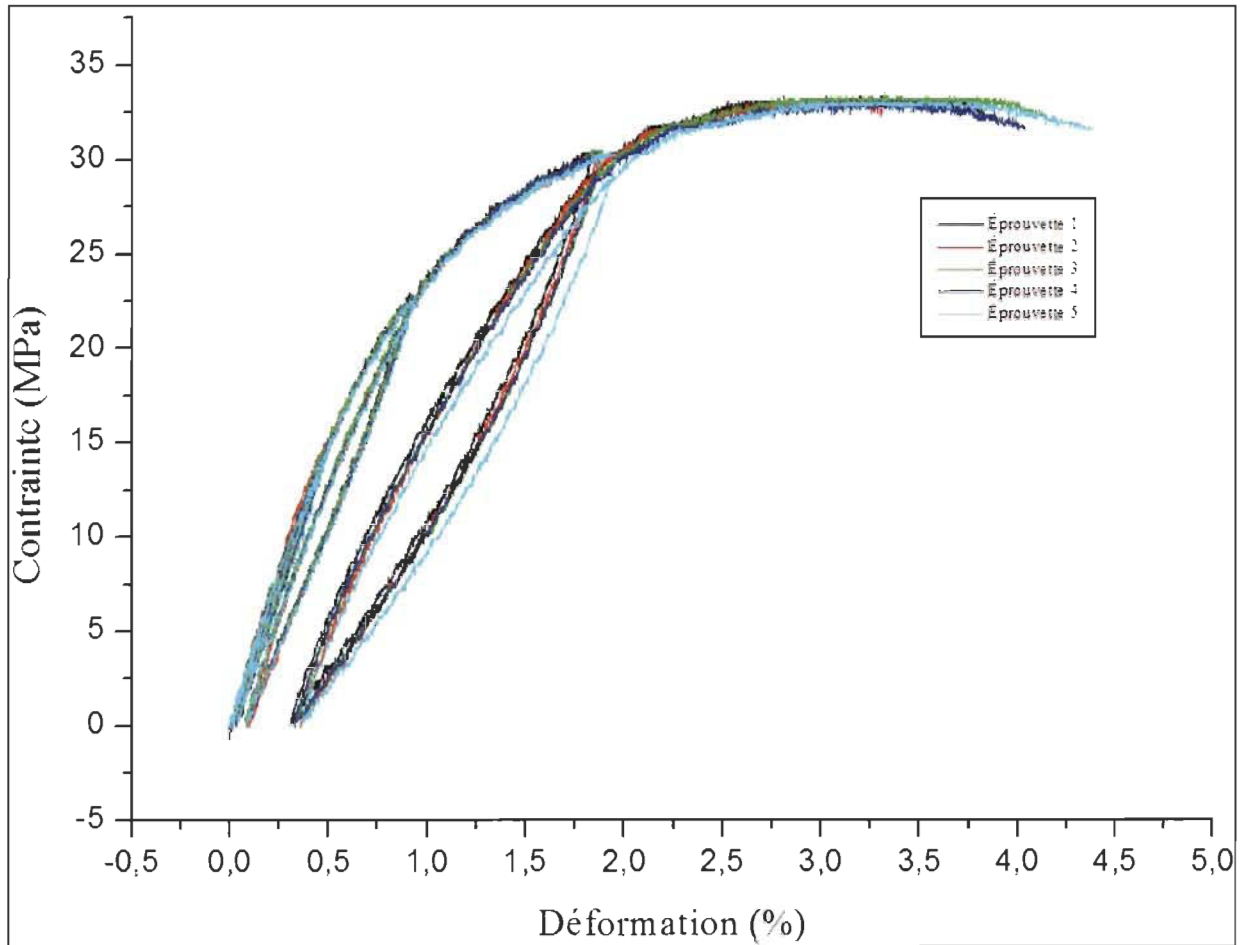


**Tableau II. 4** Propriétés mécaniques provenant des essais de traction charge-décharge de deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30% de fibres de chanvre.

Éprouvette	Éprouvette 1	Éprouvette 2	Éprouvette 3	Éprouvette 4	Éprouvette 5	Moyenne
$E_0$ (GPa)	3,502	3,619	3,472	3,539	3,341	3,495
$E_1$ (GPa)	3,441	3,581	3,456	3,470	3,336	3,457
$E_2$ (GPa)	3,399	3,511	3,420	3,393	3,326	3,410
$E_3$ (GPa)	3,337	3,311	3,261	3,222	3,255	3,277
$E_4$ (GPa)	2,736	2,772	2,741	2,696	2,725	2,734
$\sigma_{max}$ (MPa)	33,406	33,323	33,574	33,136	33,219	33,332
$\sigma_{rup}$ (MPa)	32,457	32,376	32,075	31,778	31,723	32,082
$\varepsilon$ (%)	3,810	3,298	4,157	4,037	4,4001	3,940

Pendant les deux premiers cycles, on n'enregistre pas de déformations résiduelles notables et le comportement reste élastique. Une légère variation du module d'élasticité confirme notre observation (1,7% à 2,9%). Nous dénotons une légère amélioration de la contrainte maximale (elle est supérieure à celle enregistrée dans le cas de l'essai de traction simple). La contrainte maximale moyenne atteint 33,36 MPa.

Les courbes de la figure (II.11) montrent une bonne reproduction des essais entre les éprouvettes, l'hystérésis du matériau augmente après chaque cycle dû à l'adoucissement du matériau [42], la raideur du matériau diminue après chaque chargement, cela peut être relié à l'endommagement du matériau d'après [43].



**Figure II. 11** Courbes de charge-décharge sur cinq éprouvettes saines de polypropylène renforcé de 30 % de fibres courtes de chanvres à température ambiante.

Nous pouvons quantifier la diminution de module d'élasticité par une variable d'endommagement ( $E_n$ ) pour chaque cycle charge-décharge en comparant le module de Young du matériau endommagé  $\tilde{E}$  à celui du matériau non endommagé  $E$  [44].

$$E_n = 1 - \frac{\tilde{E}}{E} \quad (34)$$

#### II.4.2.4 Endommagement pendant la charge et la décharge

Le tableau (II.5) représente l'évolution de l'endommagement calculé durant la phase de chargement pour cinq éprouvettes. Le module de Young pendant le chargement est calculé à partir de la première pente de la montée.

**Tableau II. 5** Calcul du dommage (En) pendant les cycles de chargement des deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30% de fibres de chanvre.

	Éprouvette1		Éprouvette2		Éprouvette3		Éprouvette4		Éprouvette5	
	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)
Cycle 1	3,502	0	3,619	0	3,539	0	3,539	0	3,341	0
Cycle 2	3,441	1,742	3,581	1,050	3,47	1,950	3,47	1,950	3,336	0,150
Cycle 3	3,399	2,941	3,511	2,984	3,393	4,125	3,393	4,125	3,326	0,449
Cycle 4	3,337	4,712	3,311	8,511	3,222	8,957	3,222	8,957	3,255	2,574
Cycle 5	2,736	21,87	2,772	23,40	2,696	23,82	2,696	23,82	2,725	18,438

Le tableau (II.6) représente l'évolution de l'endommagement calculé durant la phase de déchargement pour cinq éprouvettes. Le module de Young pendant le déchargement est calculé à partir de la première pente de la descente.

**Tableau II. 6** Calcul du dommage (En) pendant les cycles de déchargement des deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30% de fibres de chanvre.

Éprouvette	Éprouvette1		Éprouvette2		Éprouvette3		Éprouvette4		Éprouvette5	
	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)	E(GPa)	En(%)
Cycle 1	3,406	0	3,637	0	3,484	0	3,506	0	3,457	0
Cycle 2	3,164	7,1	3,197	12,12	3,097	11,1	3,038	13,3	3,007	13,0
Cycle 3	2,584	24,1	2,558	29,66	2,425	30,4	2,468	29,6	2,396	30,7
Cycle 4	1,475	56,7	1,539	57,68	1,473	57,7	1,469	58,1	1,379	60,1

#### II.4.2.5 Essai de traction cyclique

Un essai de traction cyclique à 16 MPa a été mené pendant sept cycles sur deux éprouvettes en polypropylène renforcé à 30 % de fibres de chanvre, puis sollicité en traction jusqu'à la rupture, les résultats obtenus sont représentés dans les tableaux (II.7) et (II.8).



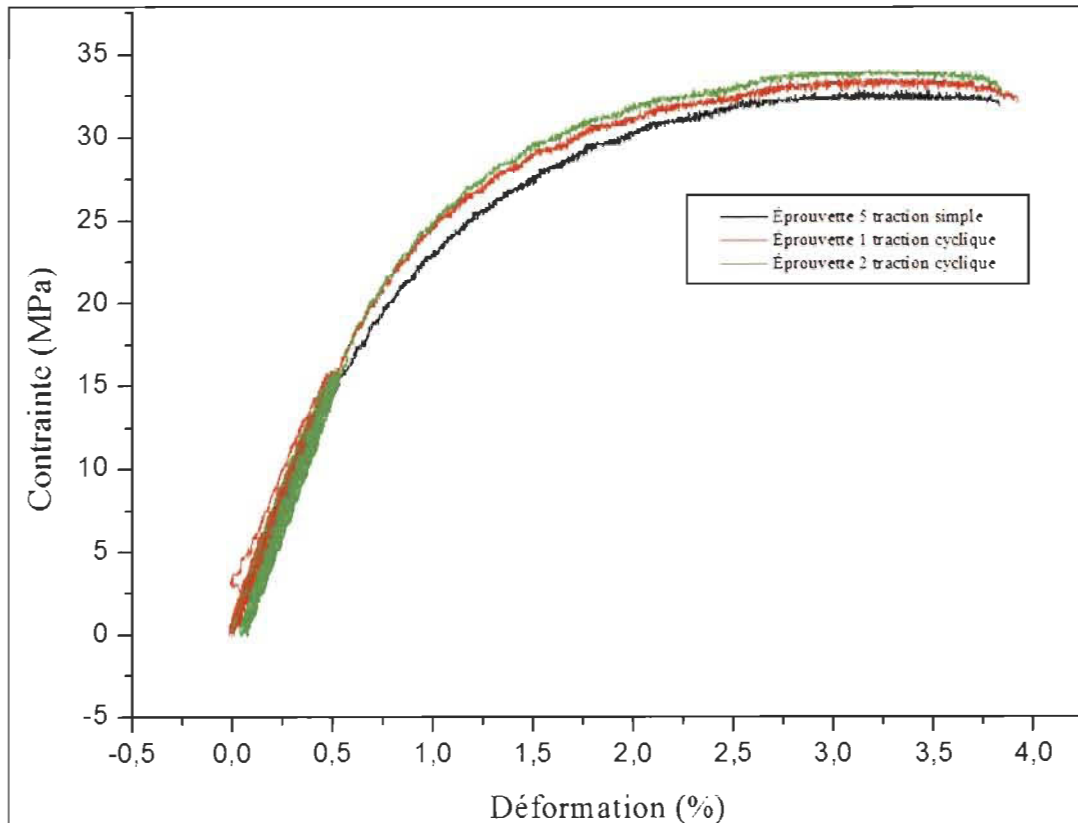
**Tableau II.7** Propriétés mécaniques provenant des essais de traction cyclique pour deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30 % de fibres de chanvre.

Éprouvettes	Éprouvette1	Éprouvette2	Moyenne
Module de Young $E_0$ (GPa)	3,588	3,712	3,65
Module de Young $E_1$ (GPa)	3,479	3,698	3,5885
Module de Young $E_2$ (GPa)	3,409	3,695	3,552
Module de Young $E_3$ (GPa)	3,393	3,683	3,538
Module de Young $E_4$ (GPa)	3,331	3,653	3,492
Module de Young $E_5$ (GPa)	3,325	3,623	3,474
Module de Young $E_6$ (GPa)	3,296	3,622	3,459
Module de Young $E_7$ (GPa)	3,260	3,609	3,434
Contrainte maximale $\sigma_{max}$ (MPa)	33,612	34,037	33,824
Contrainte à la rupture $\sigma_{rup}$ (MPa)	32,104	32,676	32,39
Déformation à la rupture $\varepsilon_{rup}$ (%)	3,922	3,840	3,881

**Tableau II. 8** Calculs du dommage après les essais de traction cyclique des deux éprouvettes en polypropylène renforcé par 30 % de fibres de chanvre.

Éprouvettes	Éprouvette1	Éprouvette2
$En_0$ (%)	0	0
$En_1$ (%)	0,030	0,003
$En_2$ (%)	0,050	0,004
$En_3$ (%)	0,054	0,008
$En_4$ (%)	0,071	0,016
$En_5$ (%)	0,073	0,023
$En_6$ (%)	0,081	0,024
$En_7$ (%)	0,091	0,028

Les courbes de comparaison entre l'essai de traction simple et cyclique figure (II.12) montrent que le matériau se durcit, cela peut être dû à la réorientation des chaînes macromoléculaires sous la contrainte axiale appliquée. La contrainte maximale atteint 34 MPa et la contrainte à la rupture est de 32.4 MPa, ces deux contraintes sont 32,94 et 31,64 MPa respectivement pour l'essai de traction simple.



**Figure II. 12** Courbe de comparaison entre essais de traction cyclique pendant sept cycles et un essai de traction simple sur éprouvette saine de polypropylène renforcé de 30 % de fibres courtes de chanvre à température ambiante.

## **II.5 Conclusion**

Le renforcement du polypropylène avec 30% de fibre de chanvre, conduit à l'augmentation de la rigidité du composite. Une amélioration du module de Young d'un facteur de 3.15 est notée. L'ajout de fibre de chanvre donne au matériau un comportement rigide et moins élastique. Une baisse importante de la déformation à la rupture est constatée.

Pour les essais de charge-décharge, on n'enregistre pas de déformations résiduelles notables et le comportement reste élastique durant les deux premiers cycles. L'hystérésis du matériau augmente après chaque cycle dû à l'adoucissement du matériau, la raideur du matériau diminue après chaque chargement et le matériau s'endommage de plus en plus.

Durant les essais de traction cyclique, on a enregistré une hausse de 3.22% pour la contrainte maximale et de 2.4% pour la contrainte à la rupture.

## **CHAPITRE III**

# **ÉTUDE DE L'EFFET DE LA TEMPÉRATURE ET DE L'HUMIDITÉ**

### III.1 Introduction

L'effet de l'humidité sur ses propriétés mécaniques ainsi que la cinétique de diffusion d'eau seront étudiés dans ce chapitre. Une première étape consiste à évaluer le comportement mécanique du composite sain (non vieillis). La deuxième étape consiste à mesurer l'effet de l'humidité et de la température d'essai sur l'évolution des propriétés mécaniques comparativement au matériau non vieilli, à l'état saturé en eau et à différents niveaux de prise d'eau.

### III.2 Effet de l'humidité sur les propriétés mécaniques du composite

En plus d'être recyclables et écologiques, les composites à fibres naturelles (CFN) présentent des propriétés mécaniques susceptibles de répondre aux exigences industrielles et donc de concurrencer des matériaux non dégradables dans plusieurs domaines d'application. Cependant, un des obstacles majeurs au développement de l'utilisation des CFN est l'effet de l'environnement, en particulier l'humidité et la chaleur qui peuvent entraîner la dégradation des pièces et les rendre impropres à l'usage. De plus, l'hétérogénéité des matériaux composites rend l'étude des processus de vieillissement et d'endommagement plus complexes, notamment dans le cas des composites injectés constitués d'une matrice thermoplastique renforcée par des fibres végétales. Le comportement hydrophile des renforts s'oppose à l'hydrophobie de la matrice, engendrant ainsi des mécanismes d'absorption différents. Le phénomène de diffusion de l'eau est dépendant de la nature des fibres, des porosités dans le matériau et de la qualité d'adhésion fibre/matrice. Ce travail présente une approche expérimentale visant la caractérisation des propriétés mécaniques du composite étudié décrit au chapitre (II). De plus, on va étudier l'influence du vieillissement hygrothermique sur l'évolution de ses propriétés mécaniques. Cette partie regroupe les résultats expérimentaux, et fait l'objet de comparaison entre les propriétés mécaniques des éprouvettes saines (non vieilles) et les éprouvettes vieilles à plusieurs niveaux de prise d'eau et à différentes températures. Nous quantifions donc les propriétés initiales de notre matériau et par la suite on mesure l'effet de l'humidité sur ces propriétés mécaniques. Les résultats des essais de traction simples et des essais de traction avec charge-décharge peuvent nous fournir des informations sur l'effet de l'humidité et la température sur l'évolution des propriétés mécaniques du

composite à matrice thermoplastique (polypropylène), renforcé à 30 % par des fibres de chanvre (fibres courtes).

Les essais effectués sont :

- i. Essais de traction monotone permettant de déterminer les différentes propriétés mécaniques à savoir, le module de Young, la contrainte maximale, la contrainte à la rupture et la déformation à la rupture, notés respectivement ( $E$ ,  $\sigma_{\max}$ ,  $\sigma_{\text{rup}}$ ,  $\varepsilon_{\text{rup}}$ ).
- ii. Essais de traction avec charge-décharge ayant pour objectif de déterminer les propriétés suivantes : l'endommagement et la déformation à la rupture, notés respectivement ( $E_n$ ,  $\varepsilon_{\text{rup}}$ ).

### III.3 Essais de traction simple

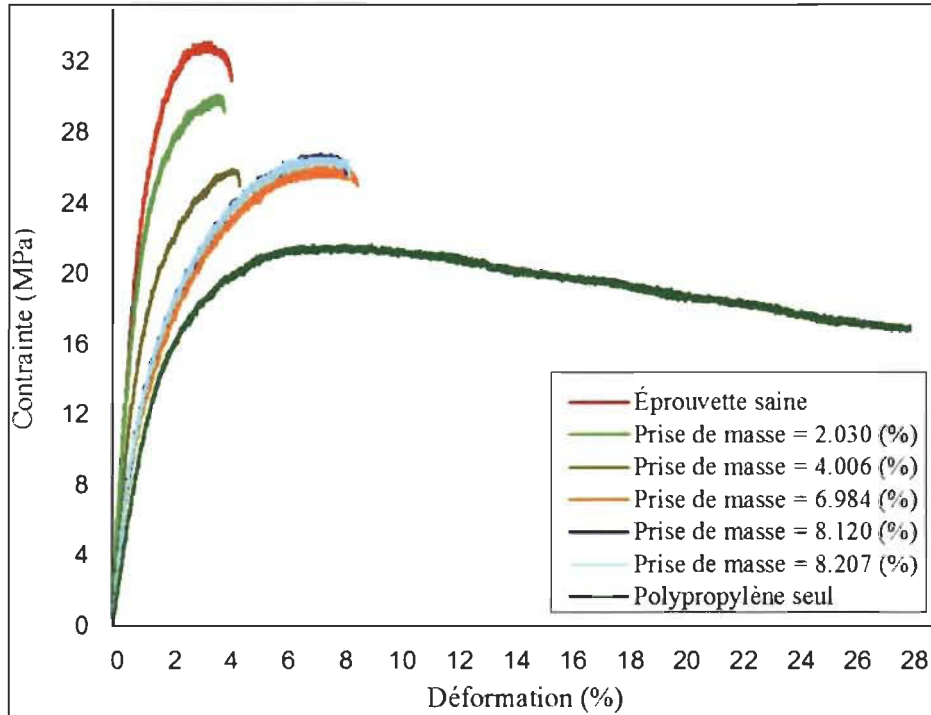
Les essais de traction monotone sont opérés conformément aux normes [45, 46] dans les conditions normales de laboratoire en température et humidité sur des éprouvettes instrumentées par un extensomètre de base de mesure de 10 mm, avec une vitesse d'avance de 2 mm/min. Le module de Young est calculé sur la partie linéaire de la courbe exprimant les contraintes appliquées sur le matériau en fonction des déformations, par l'équation (40) :

$$E = \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \quad (35)$$

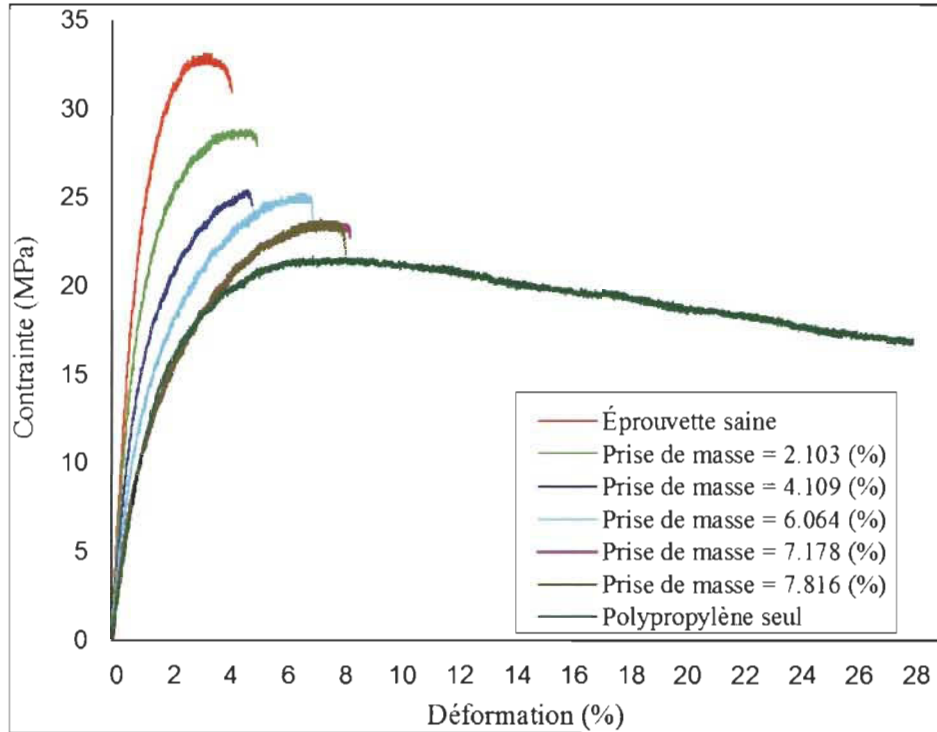
Avec  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  sont respectivement les contraintes correspondant aux petites déformations  $\varepsilon_1 = 0.1 \%$  et  $\varepsilon_2 = 0.3 \%$ . Les figures (III.1, III.2, III.3 et III.4), présentent l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour des éprouvettes immergées dans l'eau distillée à 20, 40, 60 et 80 °C à différents niveaux de prise d'eau, comparée avec le comportement de l'éprouvette saine et l'éprouvette en polypropylène seul, le niveau le plus élevé de prise de masse correspond à la prise de masse à la saturation. L'absorption d'eau par le matériau conduit à la chute de ses propriétés mécaniques ( $E$ ,  $\sigma_{\max}$ ,  $\sigma_{\text{rup}}$ ,  $\varepsilon_{\text{rup}}$ ...), en s'approchant ainsi du comportement du polypropylène sans renfort. Cela conduit à déduire que la présence d'eau dans le matériau provoque la chute des propriétés mécaniques des fibres et le comportement du matériau devient de plus en plus semblable à celui de la matrice. De plus, les courbes sur les figures (III.1, III.2, III.3 et III.4) montrent clairement que plus la prise d'eau augmente plus les performances mécaniques



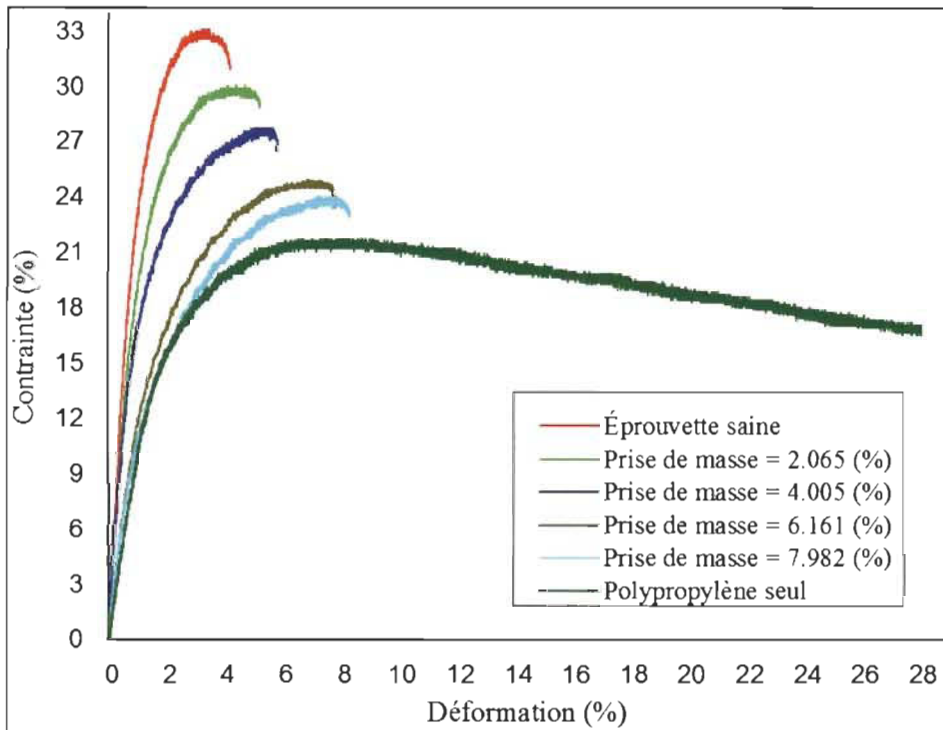
du composite baissent. Par ailleurs elles montrent que la température a effectivement un effet sur la chute des propriétés mécaniques du composite étudié, plus la température augmente plus les propriétés mécaniques du composite tend vers celles de la matrice sans renfort et le comportement devient de plus en plus élastique.



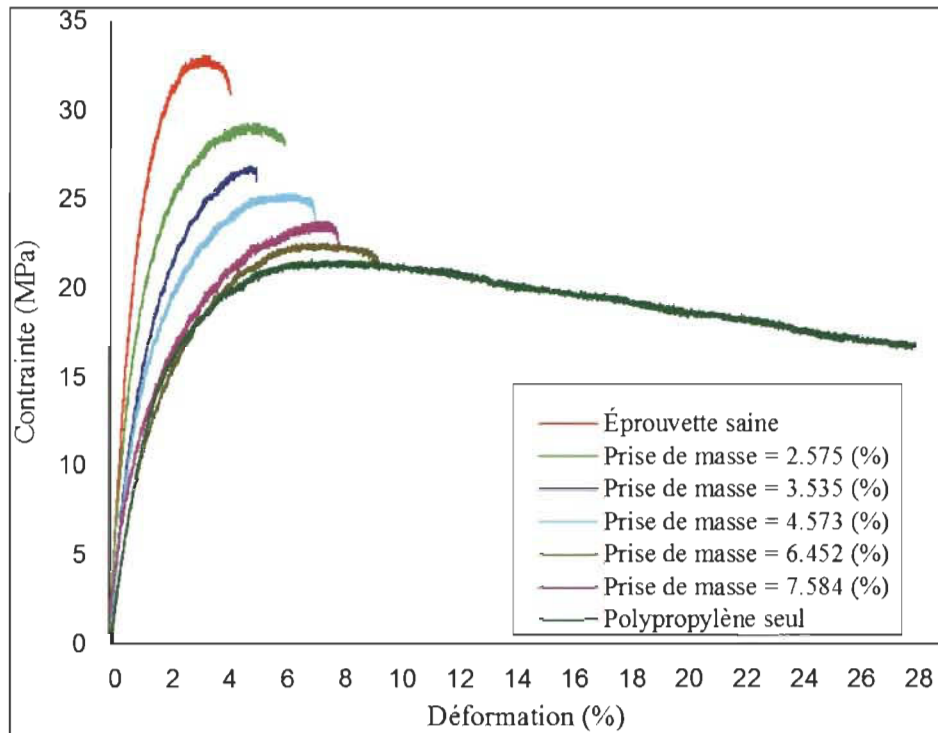
**Figure III. 1** Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 20°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).



**Figure III. 2** Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 40°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).

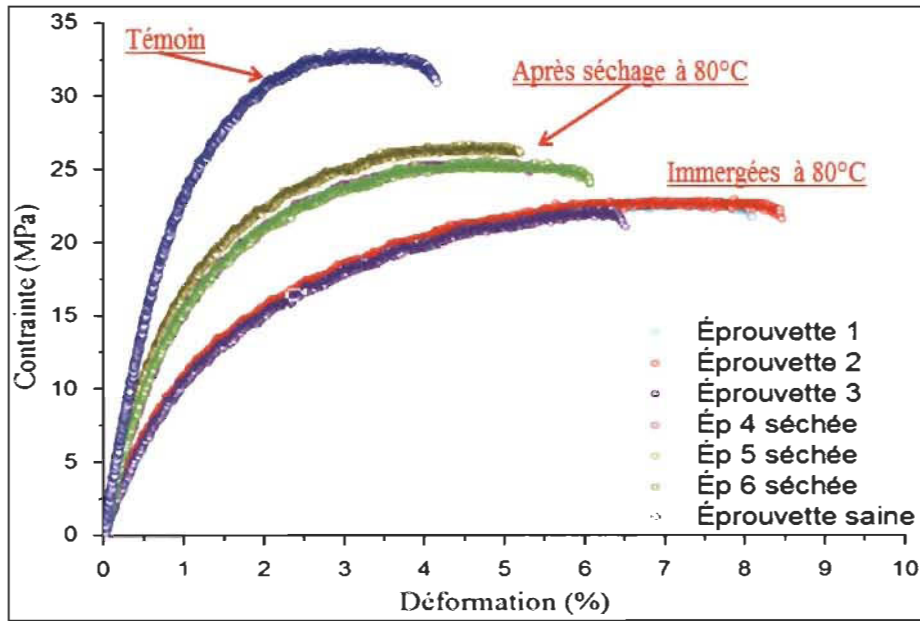


**Figure III. 3** Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 60°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).



**Figure III. 4** Courbes contrainte-déformation en traction monotone sur des éprouvettes vieilles à 80°C et à différents niveaux de prise d'eau, comparées avec des courbes de traction d'éprouvette saine et éprouvette en polypropylène seul (sans renfort).

La figure (III.5) représente une comparaison des courbes de traction simple d'éprouvette vieilles en immersion à 80 °C, éprouvettes séchées à 80 °C après immersion avec le matériau non vieilli. Comparativement au matériau sain, les tests d'immersion provoquent des chutes importantes des valeurs de contraintes maximales, contraintes à la rupture et du module de Young, et une augmentation des valeurs de la déformation à la rupture. Cette dernière est due à l'adoucissement du matériau et la perte de rigidité des fibres de chanvre suite au vieillissement hygrothermique. Le séchage des éprouvettes à 80°C permet de reprendre la masse initiale de l'éprouvette, mais une récupération partielle des propriétés mécaniques. Donc il y a eu une dégradation permanente du matériau. En outre, la comparaison des courbes d'éprouvettes contenant de l'eau et celles des éprouvettes séchées indique que la présence de l'eau dans le matériau provoque une chute temporaire due à la présence de l'eau dans le matériau. Le tableau (III.1) résume les propriétés mécaniques obtenues par des tests de traction simple opérés sur les éprouvettes immergées à 80°C et les éprouvettes immergées et séchées à 80°C.



**Figure III. 5** Courbes contraintes-déformations pour des éprouvettes immergées en eau distillée à 80°C et séchées à 80°C, comparaison avec éprouvette saine.

**Tableau III. 1** Propriétés mécaniques des éprouvettes vieillies et séchées à 80°C.

	Ép 1 Immersion à 80°C	Ép 2 Immersion à 80°C	Ép 3 Immersion à 80°C	Ép 4 Immersion et séchage à 80°C	Ép 5 Immersion et séchage à 80°C	Ép 6 Immersion et séchage à 80°C
E (GPa)	1,334	1,376	1,305	1,997	2,365	2,067
$\sigma_{max}$ (MPa)	22,911	23,043	22,385	25,658	26,816	25,658
$\sigma_{rup}$ (MPa)	21,863	21,734	21,209	19,896	26,029	18,326
$\epsilon_{rup}$ (%)	8,083	8,450	6,502	5,380	5,188	6,150

Le tableau (III.2) récapitule les résidus de propriétés mécaniques après vieillissement et séchage, les valeurs positives indiquent un gain en termes de propriété et les valeurs négatives indiquent une chute dans la valeur de la propriété en question comparativement à l'éprouvette (1).

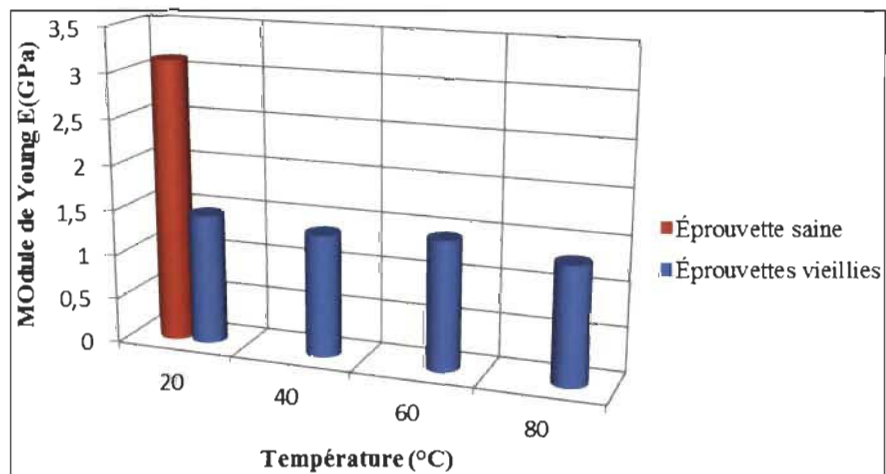
**Tableau III. 2** Résidu de propriétés mécaniques suite à un séchage après immersion.

	Ép 4	Ép 5	Ép 6
E (%)	+49,77	+77,33	+55,00
$\sigma_{max}$ (%)	+11,99	+17,04	+11,99
$\sigma_{rup}$ (%)	-9,00	+19,05	-16,18
$\epsilon_{rup}$ (%)	-33,45	-35,82	-23,91

### III.4 Effet de l'humidité et la température sur les propriétés mécaniques

Les figures (II.13, II.14, II.15 et II.16) résument l'évolution des propriétés mécaniques issues des essais de traction simple, elles présentent deux aspects sur l'influence de l'humidité et la température sur les propriétés mécaniques du composite étudié, les tests mécaniques sont menés sur des éprouvettes vieilles jusqu'à la saturation, d'une part l'effet de l'humidité sur l'évolution des propriétés mécaniques ( $E$ ,  $\sigma_{\max}$ ,  $\sigma_{\text{rup}}$ ,  $\epsilon_{\text{rup}}$ ) à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, et d'autre part l'effet de la température du bain sur l'évolution de ces propriétés mécaniques à l'état saturé en humidité.

La figure (III.6) montre l'effet du vieillissement hygrothermique sur le module de Young, les éprouvettes vieilles jusqu'à la saturation présentent une chute de 50% approximativement en terme de rigidité comparé aux éprouvettes non vieilles, ces résultats sont dans la même direction des résultats retrouvés dans la littérature. Une chute de 57% est enregistrée pour un matériau en polypropylène renforcé à 40% de fibres de chanvre S. Panthapulakkal et M. Sain [14]. Cette chute est due aux différents endommagements modifiant les propriétés mécaniques et physiques des fibres conduisant ainsi à un mauvais transfert d'efforts appliqués de la matrice vers les fibres [47]. L'effet thermique sur le module de Young paraît négligeable à l'état saturé des éprouvettes pour lequel l'effet de la température paraît moins clair, cela peut être dû à l'effet combiné de la prise d'eau et la température.



**Figure III. 6** Effet de l'humidité sur le module de Young pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.

Les figures (III.7 et III.8) résument l'évolution de la contrainte maximale et à rupture pour des éprouvettes saturées en immersion aux températures 20, 40, 60 et 80°C. Pour la contrainte maximale, une chute de 27% approximativement est enregistrée, de même pour la contrainte à rupture où une baisse de 28% approximativement est enregistrée, l'augmentation de la température conduit à une chute légère des contraintes maximale et à rupture. Une chute de 35 % de la contrainte maximale est retrouvée dans les travaux de S. Panthapulakkal et M. Sain [14], lors du vieillissement en immersion du composite en polypropylène renforcé à 40% de fibres de chanvre. Cette différence est peut-être causée par la différence du pourcentage des fibres ajoutée. La baisse des propriétés mécaniques après vieillissement est due à la dégradation des fibres gonflées, de l'interface fibre matrice qui baissent le transfert de contraintes.

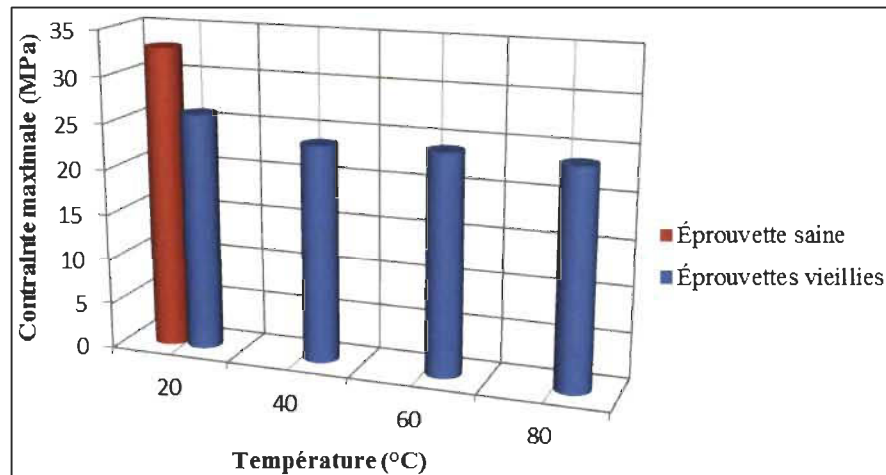


Figure III. 7 Effet de l'humidité sur la contrainte maximale pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.

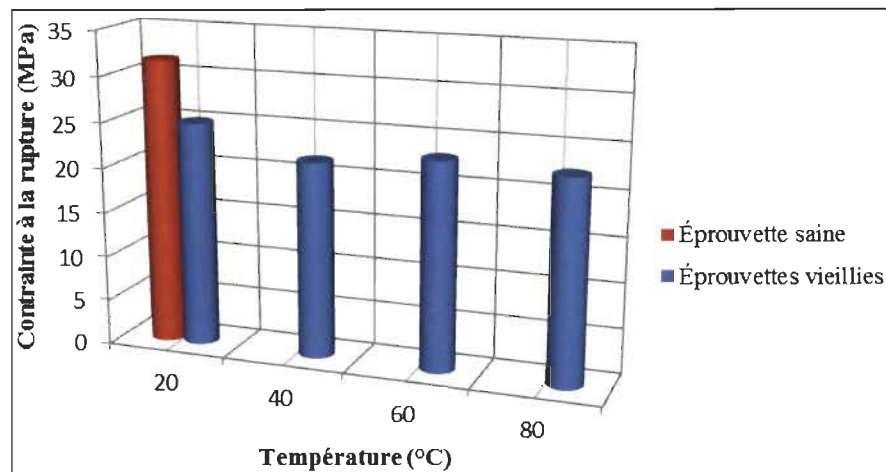


Figure III. 8 Effet de l'humidité sur la contrainte à rupture pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.

À l'état saturé, la déformation à la rupture double de valeur par rapport à l'éprouvette saine comme l'illustre la figure (III.9), l'augmentation de la température conduit à une chute légère de la déformation à la rupture.

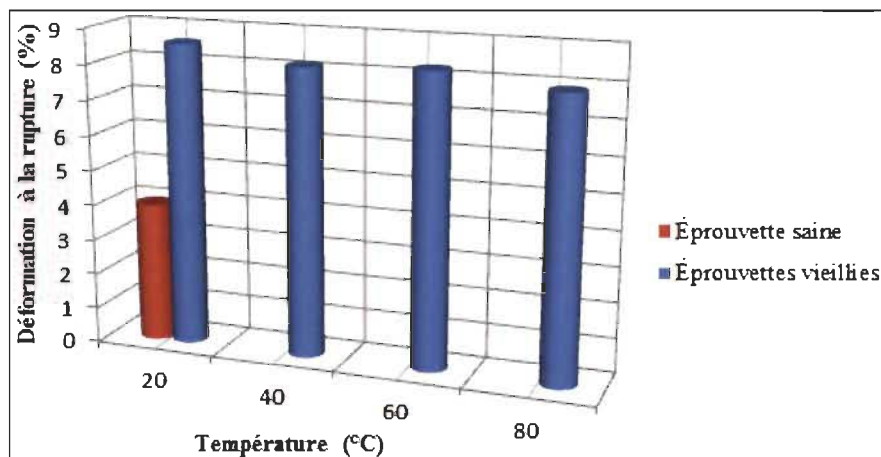


Figure III. 9 Effet de l'humidité sur la déformation à la rupture pour des éprouvettes saturées à différentes températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.

Les figures (III.10, III.11, III.12 et III.13) montrent l'évolution des propriétés mécaniques en fonction du pourcentage de prise d'eau pour chaque température (20, 40, 60 et 80°C), comparativement à l'éprouvette non vieillie qui sert d'éprouvette témoin. Sur la figure (II.22) le module de Young diminue continuellement avec la prise de masse pour toutes les températures, pour un même pourcentage de prise d'eau, le module de Young diminue avec l'augmentation de la température à l'exception de l'éprouvette saturée à 20°C.

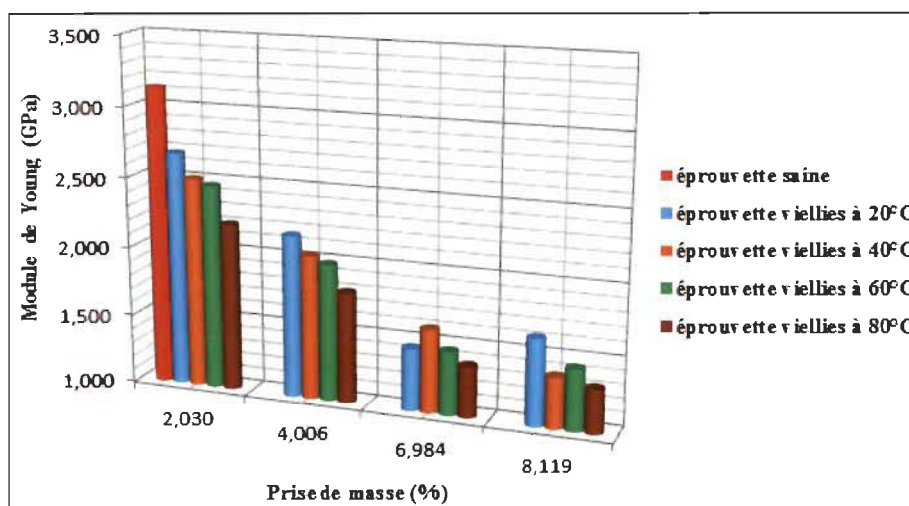


Figure III. 10 Évolutions du module de Young à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.

Les figures (II.23 et II.24) montrent l'évolution de la contrainte maximale et à rupture pour différents niveaux de prise d'eau et pour toutes les températures expérimentées. D'une façon générale, les deux chutent de la même façon avec l'augmentation de la prise d'eau et avec la hausse de la température pour la même quantité d'eau absorbée, sauf quelque cas qui présente une hausse au lieu d'une baisse.

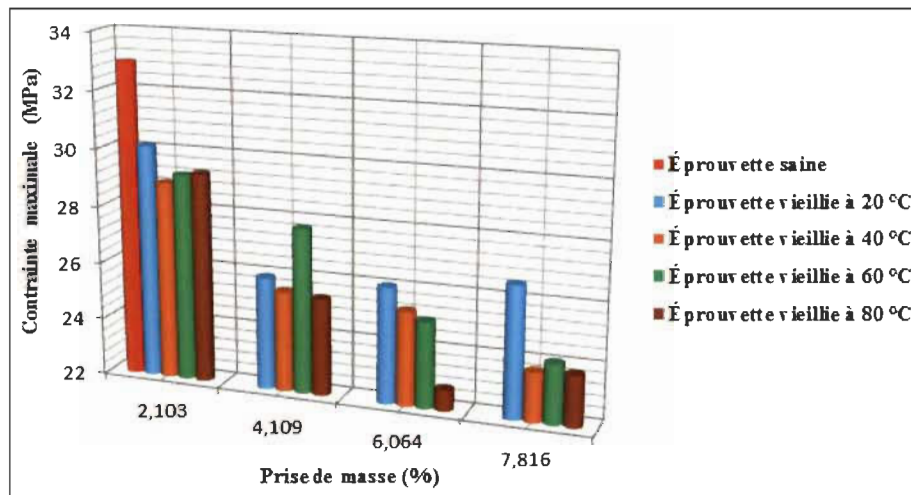


Figure III. 11 Évolutions de la contrainte maximale à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.

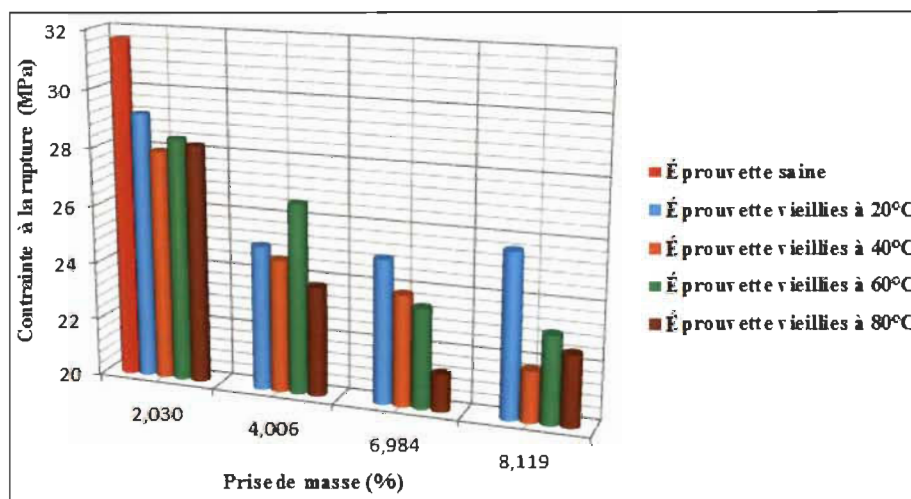
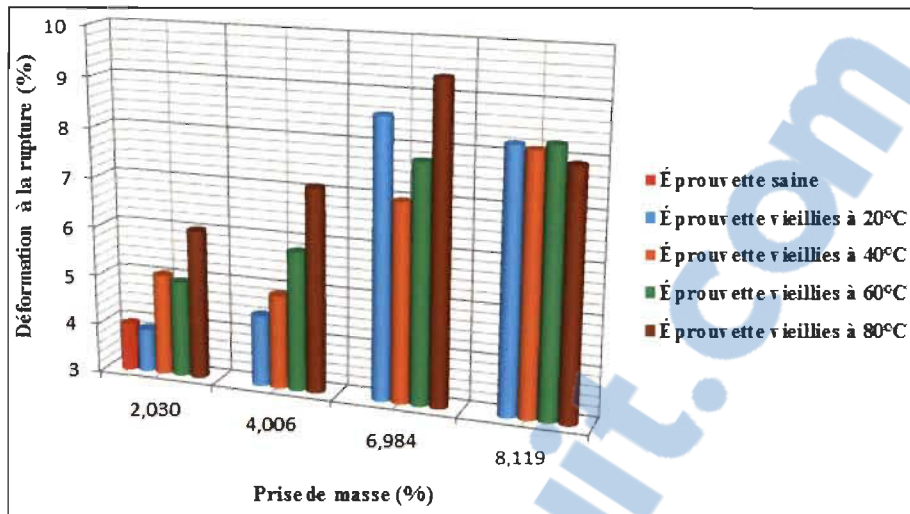


Figure III. 12 Évolutions de la contrainte à rupture à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.

La figure (III.13) illustre l'évolution de la déformation à la rupture en fonction de la température pour chaque pourcentage de prise d'eau, comparativement à l'éprouvette saine. Dans la plupart des cas, la déformation à la rupture augmente avec l'absorption d'eau et avec l'augmentation de la température.





**Figure III. 13** Évolutions de la déformation à la rupture à différents niveaux de prise d'eau pour les températures 20°C, 40°C, 60°C et 80°C, comparaison avec l'éprouvette témoin.

Le tableau (III.3) résume les propriétés mécaniques du matériau étudié pour chaque niveau de prise d'eau et pour chaque température. Le tableau (III.4) résume le pourcentage de chute ou de hausse des propriétés mécaniques issues des tests de traction simple pour des éprouvettes à l'état saturé en eau, vieilles en immersion aux températures (20, 40, 60 et 80°C). L'endommagement du matériau augmente de 48.6 % à 57 % approximativement en passant de 20°C à 80°C. La contrainte maximale chute d'une valeur entre 18.5 % et 28 % de même pour la contrainte à rupture qui fait une chute entre 18.89 % et 28.9 %. Quant à la déformation à la rupture, sa valeur est deux fois supérieure à la déformation du matériau sain.

**Tableau III. 3** Propriétés mécaniques pour chaque température et niveau de prise d'eau

température (°C)	Prise d'humidité (%)	E (GPa)	$\sigma_{max}$ (MPa)	$\sigma_{rup}$ (MPa)	R <sub>0,2</sub> (MPa)	$\epsilon_{rup}$ (%)
20	(Saine) 0	3,13	32,94	31,638	21,5	3,96
80	2,575	2,20	29,30	28,223	27,500	6,025
80	4,573	1,80	25,38	23,789	20,000	7,100
80	6,452	1,37	22,73	21,290	19,000	9,351
80	7,584	1,32	23,78	22,479	20,000	7,931
60	2,065	2,47	29,21	28,410	28,000	4,935
60	4,005	1,99	27,73	26,553	26,000	5,804
60	6,161	1,46	25,00	23,455	21,500	7,767
60	7,982	1,44	24,08	23,043	20,000	8,269
40	2,103	2,50	28,88	27,948	23,500	5,045
40	4,109	2,04	25,50	24,585	23,500	4,891
40	6,064	1,61	25,28	23,846	21,500	6,982
40	7,816	1,37	23,72	21,773	19,000	8,142
20	2,030	2,68	30,11	29,171	29,000	3,878
20	4,006	2,16	25,92	25,003	24,500	4,442
20	6,984	1,45	26,04	24,974	21,000	8,576
20	8,120	1,61	26,84	25,66	12,5	8,22

**Tableau III. 4** Pourcentage de perte de propriété mécanique

Paramètres	1-(E/E <sub>0</sub> ) (%)	1-( $\sigma_{max}/\sigma_{0,max}$ ) (%)	1-( $\sigma_{rup}/\sigma_{0,rup}$ ) (%)	$\epsilon/\epsilon_0$
Éprouvette saine	0	0	0	1
Saturée à 20°C	48,61	18,52	18,89	2,07
Saturée à 40°C	56,22	28	31,18	2,06
Saturée à 60°C	53,85	26,89	27,17	2,09
Saturée à 80°C	57,85	27,82	28,95	2,00

### III.5 Essais de traction charge-décharge

Les essais de traction cyclique sont réalisés dans le but de déterminer l'évolution de l'endommagement en fonction du pourcentage d'eau absorbée à différentes températures et en fonction de la déformation résiduelle. Les essais sont réalisés avec une vitesse d'avance de 2 mm/min, le premier cycle atteint une contrainte maximale de 4 MPa, une incrémentation de 4 MPa en contrainte est programmée pour chaque cycle.

Les figures (III.14, III.15, III.16 et III.17) montrent les courbes de contrainte en fonction de la déformation pour les essais de tractions charge-décharge, les premiers cycles présentent un comportement élastique assez important, après chaque cycle l'hystérésis

augmente, ce qui est dû à l'adoucissement du matériau causé par l'endommagement [42], la prise d'eau contribue davantage à l'endommagement du matériau et à son adoucissement, plus le pourcentage de prise d'eau augmente plus la rigidité du matériau diminue. La déformation à la rupture augmente et la déformation résiduelle diminue, le comportement du matériau devient de plus en plus élastique, cela vient renforcer les observations faites pour les essais de traction simple.

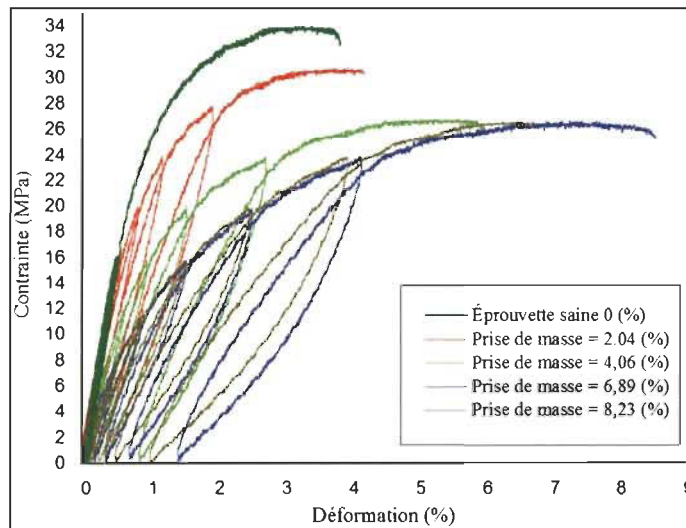


Figure III. 14 Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieillies en immersion à 20°C et à différents niveaux de prise d'eau.

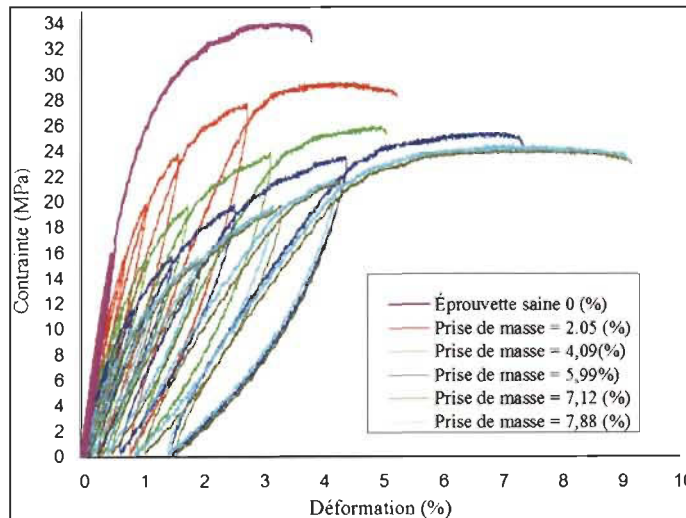
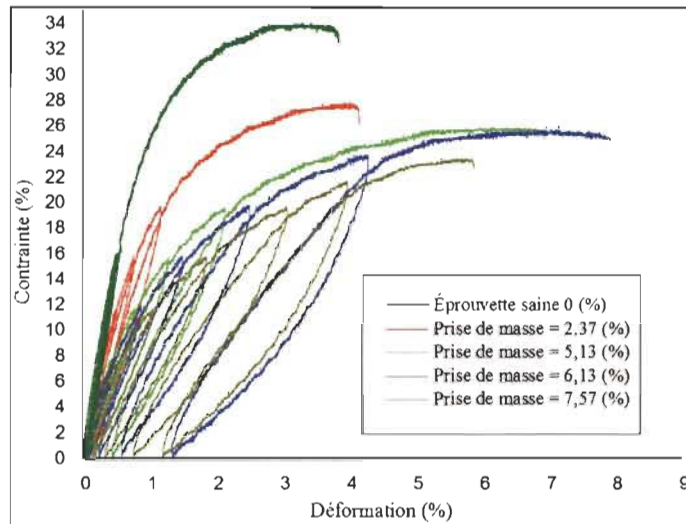
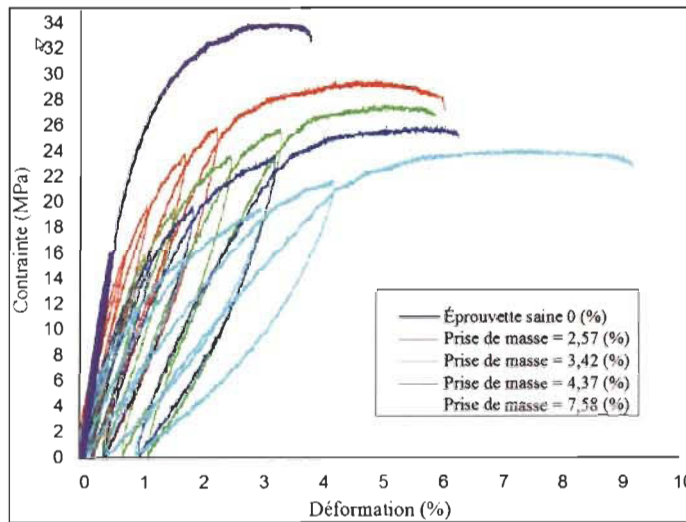


Figure III. 15 Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieillies en immersion à 40°C et à différents niveaux de prise d'eau.





**Figure III. 16** Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieilles en immersion à 60°C et à différents niveaux de prise d'eau.



**Figure III. 17** Courbes contrainte-déformation en traction cyclique sur des éprouvettes vieilles en immersion à 80°C et à différents niveaux de prise d'eau.

Les figures (III.18, III.19, III.20 et III.21), représente des courbes d'évolution de l'endommagement en fonction de la déformation résiduelle, recueillie des essais de charge décharge. Durant les premiers cycles, l'endommagement et la déformation sont nuls ou négligeables. Plus la déformation résiduelle augmente, plus l'endommagement du matériau augmente. Ces deux derniers augmentent simultanément avec la prise d'eau. L'endommagement s'avère ne pas être affecté par la température de l'essai, contrairement à la déformation résiduelle qui diminue avec l'augmentation de la température. Cela est dû à l'adoucissement du matériau.

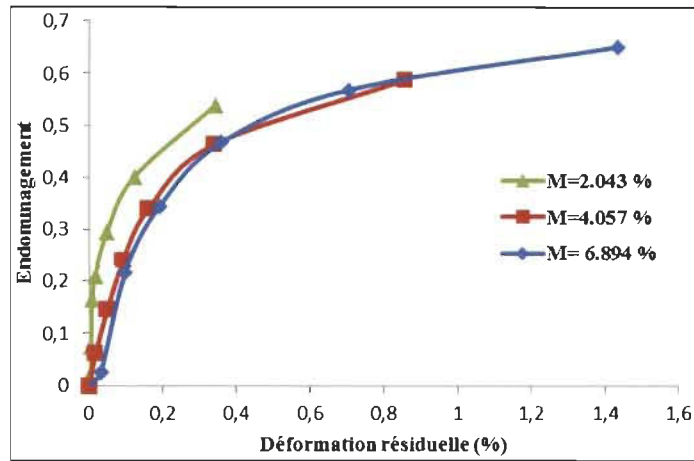


Figure III. 18 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 20°C.

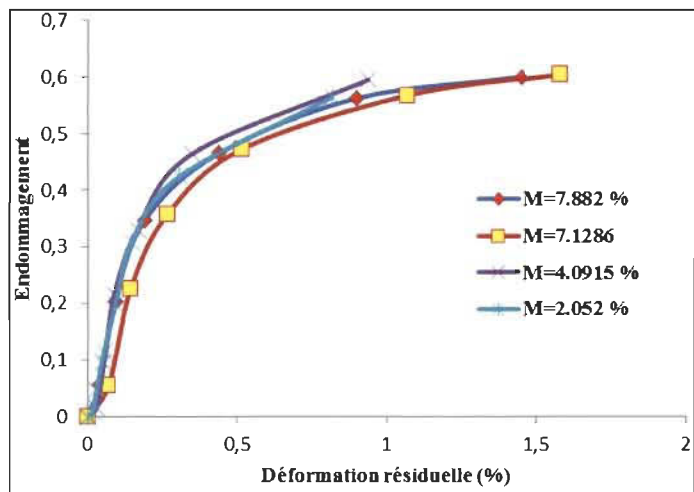


Figure III. 19 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 40°C.

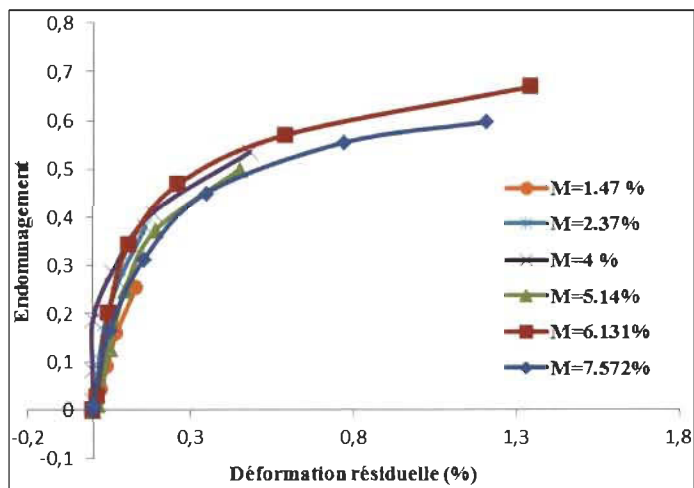
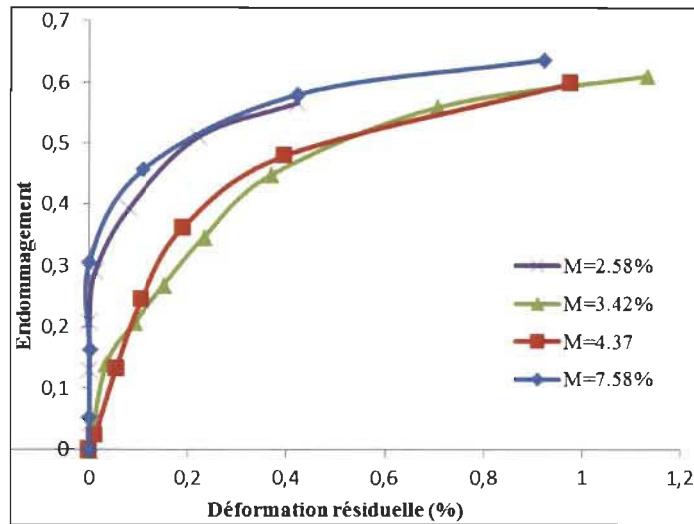


Figure III. 20 Évolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 60°C.



**Figure III. 21** Evolution de l'endommagement en traction cyclique en fonction de la déformation résiduelle à différents niveaux de prise d'eau en immersion à 80°C.

### III.6 Conclusion

L'effet du vieillissement hygrothermique sur notre matériau est étudié. Des tests de traction monotone et cyclique sont réalisés dans le but de déterminer l'évolution des propriétés mécaniques du composite après un vieillissement isothermique en immersion. Il en sort que toutes les propriétés mécaniques du composite sont affectées par la prise d'eau et par la température de l'essai. Le module de Young chute de 50%, la contrainte maximale chute de 27%, la contrainte à rupture présente une baisse de 28% et la valeur déformation à la rupture double comparativement aux éprouvettes non vieilles. L'augmentation de la température conduit à une chute des propriétés mécaniques du composite qui tend à rejoindre celles de la matrice sans renfort. Pendant les essais de charge décharge le matériau perd sa rigidité et le module de Young diminue en fonction du nombre de cycles, tandis que pour les essais de traction cycliques on constate que le module de Young diminue en fonction du nombre de cycles. Les essais de traction cyclique montrent que l'endommagement du matériau augmente après chaque cycle avec l'augmentation de la déformation résiduelle, ces deux derniers augmentent simultanément avec la prise d'eau, la température n'a pas d'effet sur l'endommagement, tandis qu'elle a un effet inverse sur la déformation résiduelle qui diminue avec l'augmentation de la température. Nous pouvons dire que :

- Les propriétés mécaniques du composite, module de Young  $E$ , contrainte maximale  $\sigma_{\max}$ , contrainte à la rupture  $\sigma_{\text{rup}}$ , diminuent avec l'augmentation du pourcentage de prise d'eau.
- La déformation à la rupture  $\epsilon_{\text{rup}}$  augmente avec la hausse du pourcentage de prise d'eau.
- La gamme de température utilisée n'apporte pas de modifications sensibles vis-à-vis de l'évolution des propriétés mécaniques.
- La déformation à la rupture augmente avec l'accroissement de la prise de masse.

## **CHAPITRE IV**

# **CINÉTIQUE DE DIFFUSION ET MOUILLABILITÉ**



**IV.1 Introduction** Le présent chapitre fait l'objet d'étude de mouillabilité et de cinétique de diffusion d'eau dans notre matériau. La première partie est dédiée à l'étude de mouillabilité, dans le but de quantifier l'aptitude du matériau à absorber l'eau. La deuxième partie concerne les tests de prise d'eau à différentes températures et la cinétique de séchage. Les résultats de prise de masse en immersion, ainsi que les différentes caractéristiques de diffusion propres au matériau sont présentés dans ce chapitre. L'effet de la température sur la cinétique de diffusion est abordé à la fin du chapitre.



## IV.2 Cinétique de diffusion d'eau en immersion

Dans un environnement humide, un composite à renforts naturels a tendance à absorber de l'eau à cause de la nature hydrophile des renforts. La présence de cette eau dans le composite présente des effets indésirables sur les propriétés mécaniques du matériau. Ainsi, il est important d'étudier le phénomène de diffusion de l'eau afin d'estimer les dégradations que l'eau absorbée peut provoquer et réduire sa diffusion. Un premier objectif serait de quantifier le pourcentage de prise de masse en fonction du temps de vieillissement. Les résultats recueillis de la littérature montrent que la diffusion de l'eau dans le matériau est caractérisée par une pente linéaire exprimée par un coefficient de diffusion ( $D$ ). Cette prise de masse converge de plus en plus vers un plateau de saturation pour atteindre une prise de masse de saturation qui dépend du pourcentage d'humidité de l'environnement [48]. Le temps nécessaire pour atteindre ce plateau de saturation est fonction de la température de l'environnement et cela indépendamment du pourcentage d'humidité de ce dernier. La cinétique du processus de diffusion d'humidité dans un composite dépend de plusieurs variables (la nature du renfort, la nature de la matrice, la nature de l'interface fibre-matrice, la présence de porosités ...). La cinétique de diffusion ne peut être classifiée de Fickienne si la partie initiale (partie supérieure ou égale à 60% de la prise de masse à la saturation) de la courbe d'absorption et désorption n'est pas linéaire en fonction de la racine carrée du temps. De plus, après cette partie linéaire les courbes d'absorption doivent converger vers une asymptote représentant la prise de masse à la saturation [49].

### IV.3 Test de mouillabilité

En ajoutant une goutte d'eau sur la surface d'un solide, on vient d'augmenter la surface du système (solide-liquide) de  $(\Delta A)$ . L'énergie libre ou de Gibbs ( $G$ ) du système augmente d'une quantité  $\Delta G$ . Cette dernière est le produit de la tension de surface ( $\gamma$ ) par la variation de surface comme le montre l'équation (36).

$$\Delta G = \gamma \Delta A \quad (36)$$

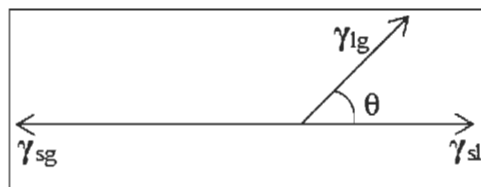
La mouillabilité concerne le contact entre un solide et un liquide. Elle est caractérisée par un angle de contact ( $\theta$ ). Cet angle est déterminé à partir de l'équilibre des forces agissant sur l'interface de contact solide-liquide-gaz, figure (IV.1). Le coefficient de mouillabilité ( $\cos \theta$ ) est donné par l'équation (37).

$$\cos \theta = \frac{\gamma_{gs} - \gamma_{ls}}{\gamma_{gl}} \quad (37)$$

$\gamma_{gs}$  : tension de surface entre l'air (gaz) et le solide.

$\gamma_{gl}$  : tension de surface entre l'air (gaz) et le liquide.

$\gamma_{ls}$  : tension de surface entre le liquide et le solide.



**Figure IV. 1** Équilibre des forces sur la ligne de contact air-liquide-solide, tirée de [50].

Les tests de mouillabilité sont menés dans l'optique de classer notre matériau vis-à-vis de son aptitude à la prise d'eau. L'angle de contact ( $\theta$ ) dans les tests de mouillabilité permet de dévoiler la capacité d'un liquide de s'étaler sur un solide. Cet angle est défini comme étant l'angle entre la tangente du profile de la goutte au point de contact et la surface du solide comme illustré sur la figure (IV.2).

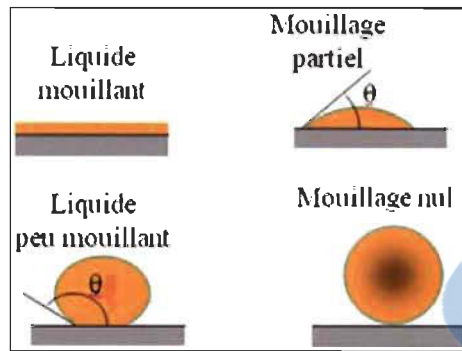


Figure IV. 2 Mouillabilité et angle de contact, tirée de [51].

Les mesures de l'angle de contact ( $\theta$ ) permettent de mesurer l'hydrophobicité du matériau : un angle de contact grand et une énergie de surface faible nous indiquent que le matériau est hydrophobe. Un petit angle de contact et une grande énergie de surface nous indiquent que le matériau est hydrophile.

- Si l'angle de contact  $\theta = 0^\circ$ , la mouillabilité est parfaite.
- Si l'angle de contact  $\theta < 90^\circ$ , le liquide mouille le solide (mouillabilité partielle).
- Si l'angle de contact  $180^\circ > \theta > 90^\circ$ , le liquide ne mouille pas le solide (très faible mouillabilité).
- Si l'angle de contact  $\theta = 180^\circ$ , la mouillabilité est nulle.

D'autres renseignements peuvent être donnés par les essais de mouillabilité, telle que l'énergie libre de la surface, son état physique (rugosité) ainsi que son état chimique. La figure (IV.4) récapitule les valeurs d'angles de contact de cinq (5) éprouvettes testées en mouillabilité. Pour voir l'effet de l'état de surface sur la mouillabilité. Chaque éprouvette possède une face et une tranche polie ainsi qu'une face et une tranche (coté) non polie, comme le montre la figure (IV.3).

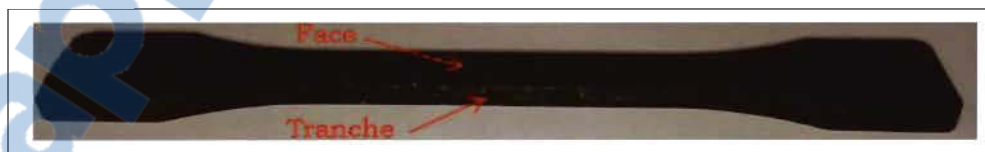


Figure IV. 3 Tranche et face d'éprouvette pour le test de mouillabilité.

La moyenne des angles de contact sur les faces non polies des cinq (5) éprouvettes est de  $85.084^\circ$  ( $\theta < 90^\circ$ ), ce qui nous conduit à dire que notre matériau présente une mouillabilité partielle sur les faces non polies, à l'exception des deux premières éprouvettes qui présente une très faible mouillabilité. La moyenne des angles de contact sur les faces polies des cinq (5) éprouvettes est de  $78.1^\circ$  ( $\theta < 90^\circ$ ), ce qui nous conduit à

dire que notre matériau présente une mouillabilité partielle sur les faces polies. Soit une diminution de  $6.984^\circ$  par rapport aux surfaces non polies, ce qui nous laisse dire que le polissage augmente l'hydrophobie de la surface. Cela peut être causé par l'augmentation du nombre de fibres en contact avec l'air, qui sont dénudées de la matrice hydrophile donnant ainsi plus d'hydrophobie aux surfaces polies. Tandis que sur les tranches polies l'angle de contact moyen pour les cinq (5) éprouvettes est de  $80.606^\circ$ , soi-disant une différence de  $2.506^\circ$  par rapport aux faces polies. Ce qui nous laisse conclure que notre matériau est faiblement mouillable, d'où son niveau de prise de masse relativement bas comparé au cas se trouvant dans la littérature.

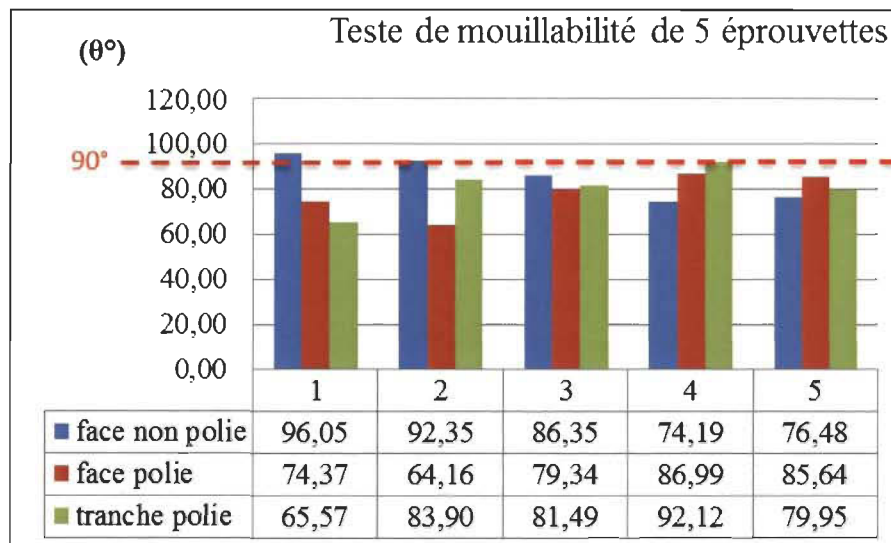


Figure IV. 4 Mouillabilités à température ambiante et effet de l'usure sur la mouillabilité.

#### IV.4 Prise d'humidité en immersion

Les figures (IV. 5, IV.6, IV.7, IV.8 et IV.9), représentent l'évolution isothermique de la prise d'eau en fonction de la racine carrée du temps exprimé en jours, pour des éprouvettes immergées dans l'eau distillée à différentes températures ( $20^\circ\text{C}$ ,  $40^\circ\text{C}$ ,  $60^\circ\text{C}$  et  $80^\circ\text{C}$ ). À première vue on peut distinguer deux phases dans le mécanisme d'absorption, une première partie, pseudo linéaire caractérisée par un coefficient de diffusion qui traduit la vitesse à laquelle le matériau absorbe les particules d'eau. La deuxième phase constitue une étape de stabilité ou le matériau atteint une certaine saturation, qui est caractérisée par une prise de masse à la saturation. Ce plateau de saturation est atteint après 443 jours, 152 jours, 40 jours et 16 jours pour les quatre températures  $20^\circ\text{C}$ ,  $40^\circ\text{C}$ ,  $60^\circ\text{C}$  et  $80^\circ\text{C}$  respectivement.

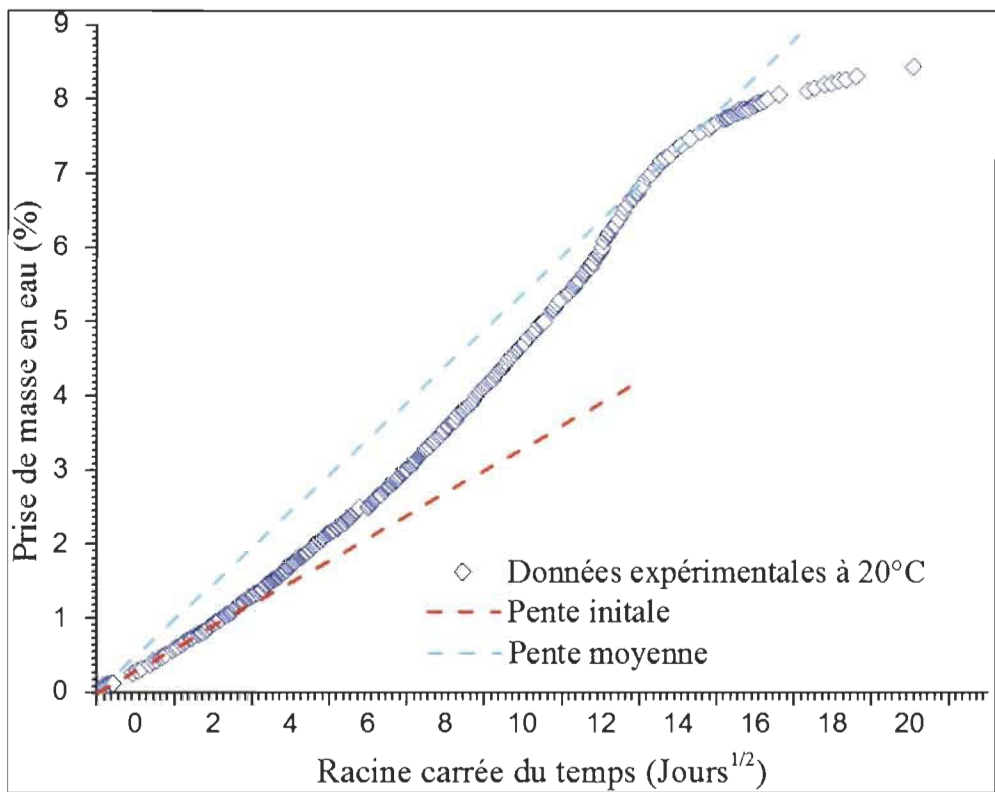


Figure IV. 5 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 20°C.

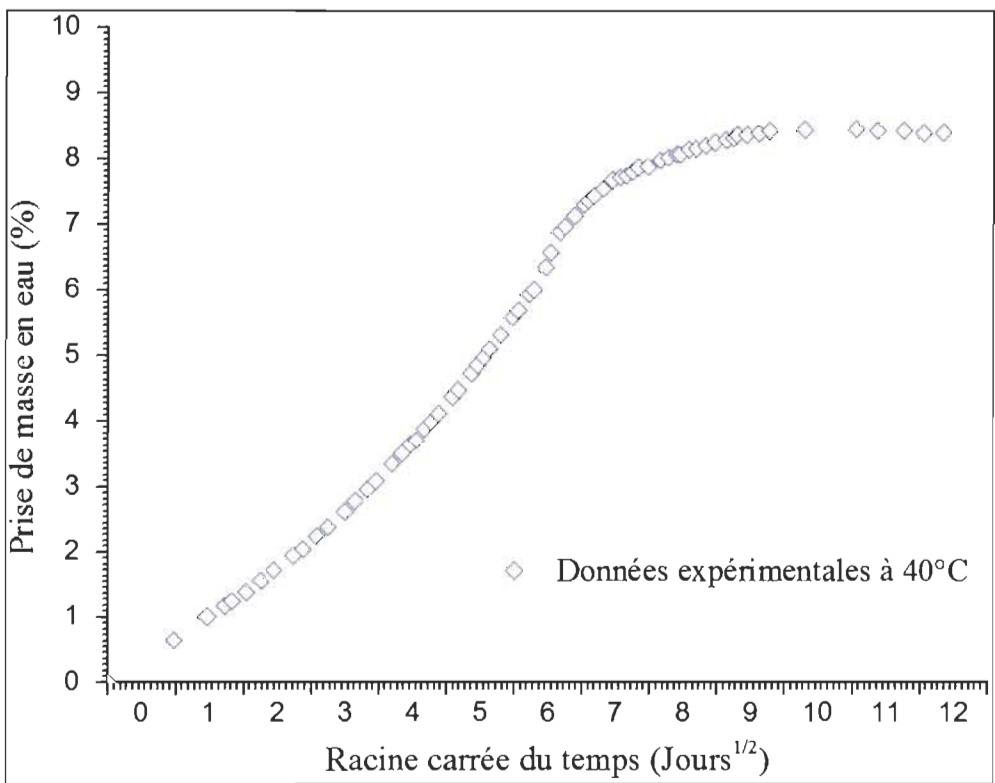


Figure IV. 6 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 40°C.

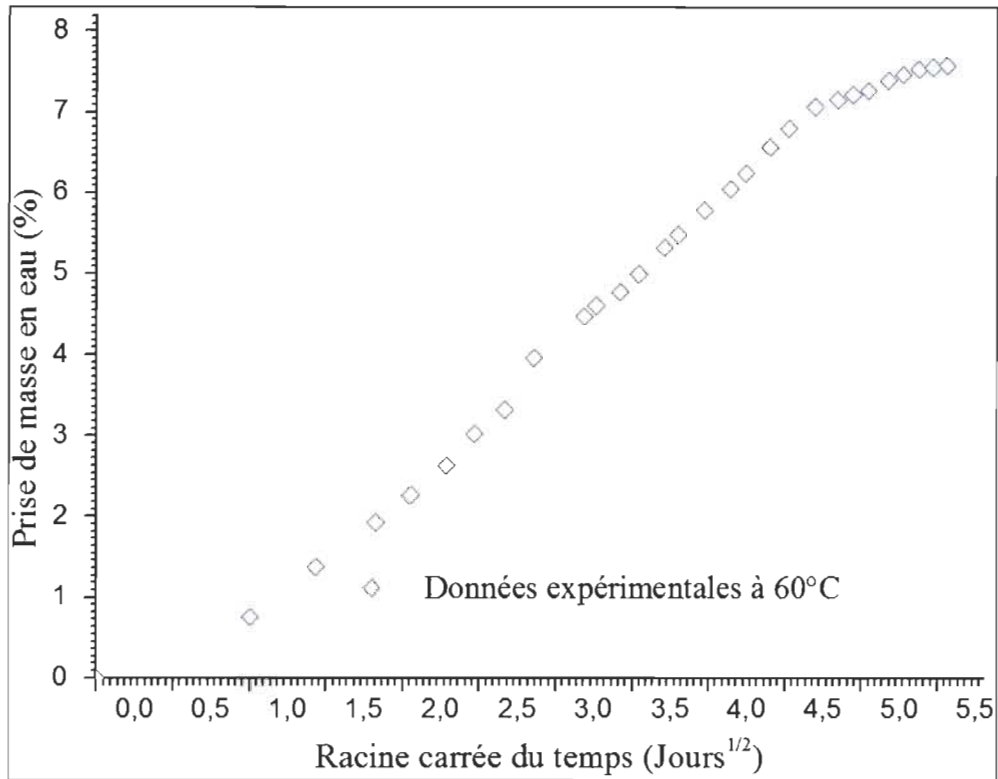


Figure IV. 7 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 60°C.

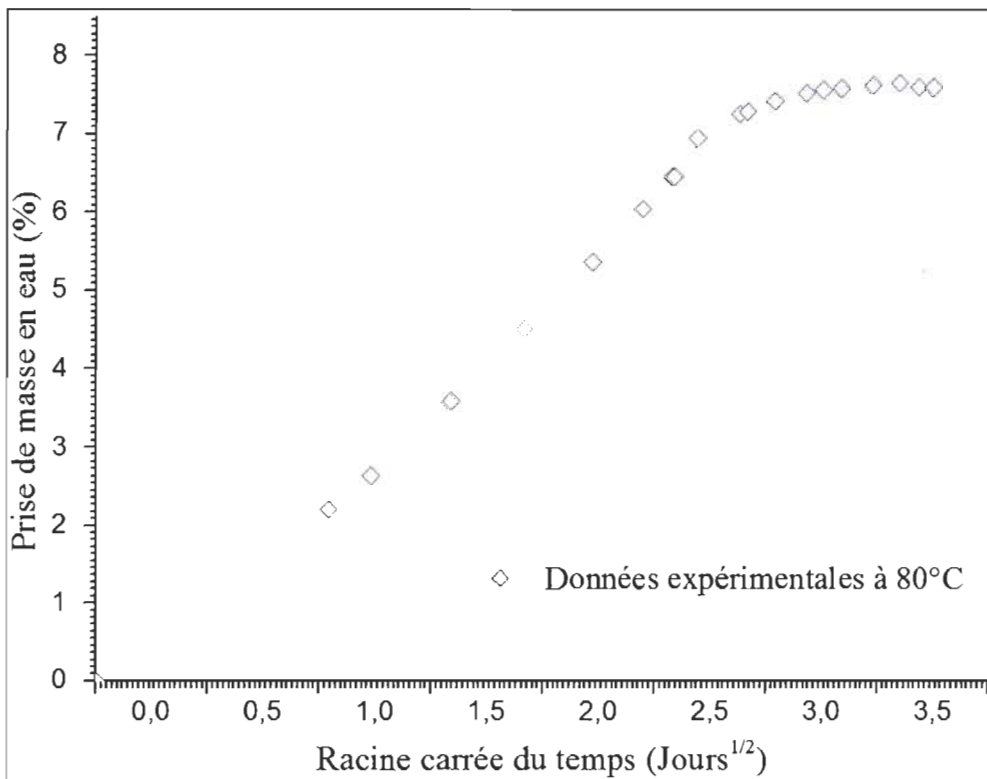
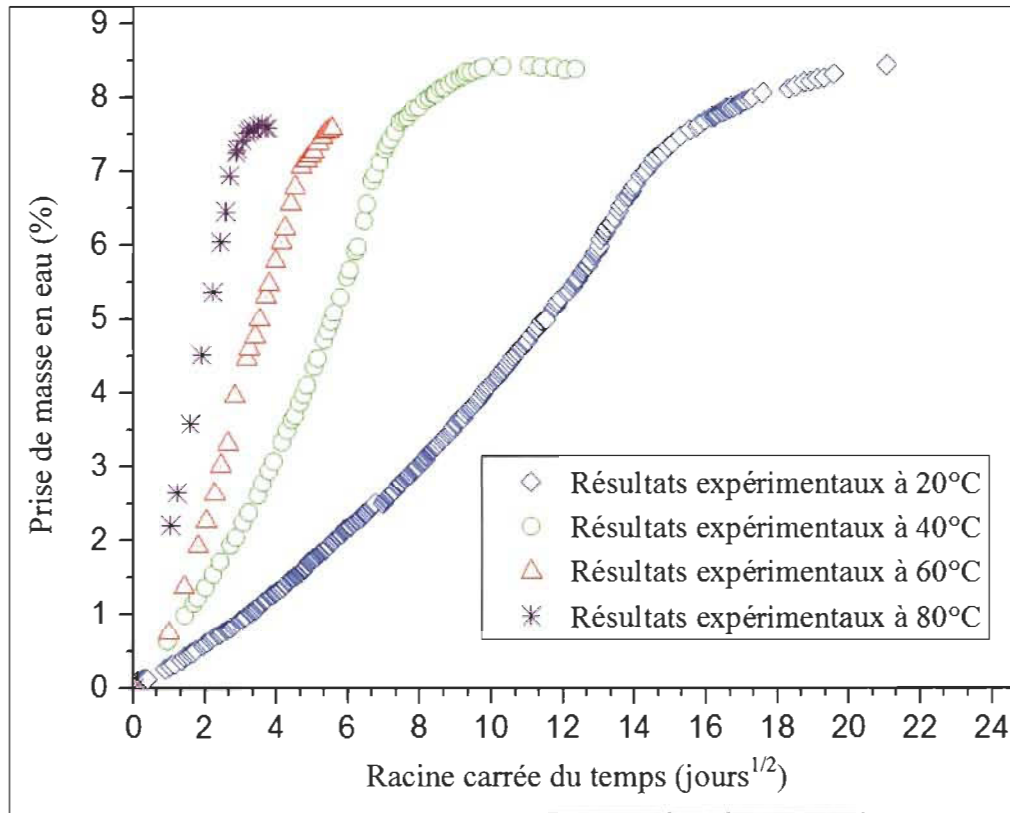


Figure IV. 8 Cinétique d'absorption isothermique en immersion dans l'eau distillée en fonction du temps à 80°C.



**Figure IV. 9** Prise d’humidité en immersion en fonction du temps à différentes températures.

L'évolution de la diffusion d'humidité dans le matériau est établie par la méthode classique de gravimétrie, réalisée sur une balance de précision de  $10^{-3}$  g, la prise de masse du matériau composite peut être calculée par la différence de masse de l'échantillon exposé à l'eau et sa masse à l'état non vieillie [52], comme le montre l'équation (38).

$$M(\%) = \left( \frac{m_f - m_0}{m_0} \right) \times 100 \quad (38)$$

Le coefficient de diffusion peut être calculé par l'équation (39), en utilisant la pente de la partie linéaire de la courbe de prise de masse [52, 53], la figure (IV.5) montre deux types de pentes, pente initiale et moyenne. Ces dernières peuvent nous fournir deux coefficients de diffusion. Le premier est le coefficient de diffusion initial, noté dans la suite de l'étude  $D_0$ , le second est le coefficient de diffusion moyen noté  $D_{moy}$ . Le tableau (IV.1) récapitule les valeurs des deux coefficients de diffusion calculés à base de l'équation (39). On peut remarquer une différence importante entre  $D_0$  et  $D_{moy}$

$$D = \pi \left( \frac{h}{4M_{\infty}} \right)^2 \times \left( \frac{M_2 - M_1}{\sqrt{t_2} - \sqrt{t_1}} \right)^2 \quad (39)$$

**Tableau IV. 1** Calcul des coefficients de diffusion initiaux et moyens

T (°C)	D <sub>0</sub> (mm <sup>2</sup> /jours)	D <sub>moy</sub> (mm <sup>2</sup> /jours)
20	6.516 10 <sup>-3</sup>	1,09 10 <sup>-2</sup>
40	2.579 10 <sup>-2</sup>	4,674 10 <sup>-2</sup>
60	8 10 <sup>-2</sup>	1,352 10 <sup>-1</sup>
80	2.722 10 <sup>-1</sup>	3,735 10 <sup>-1</sup>

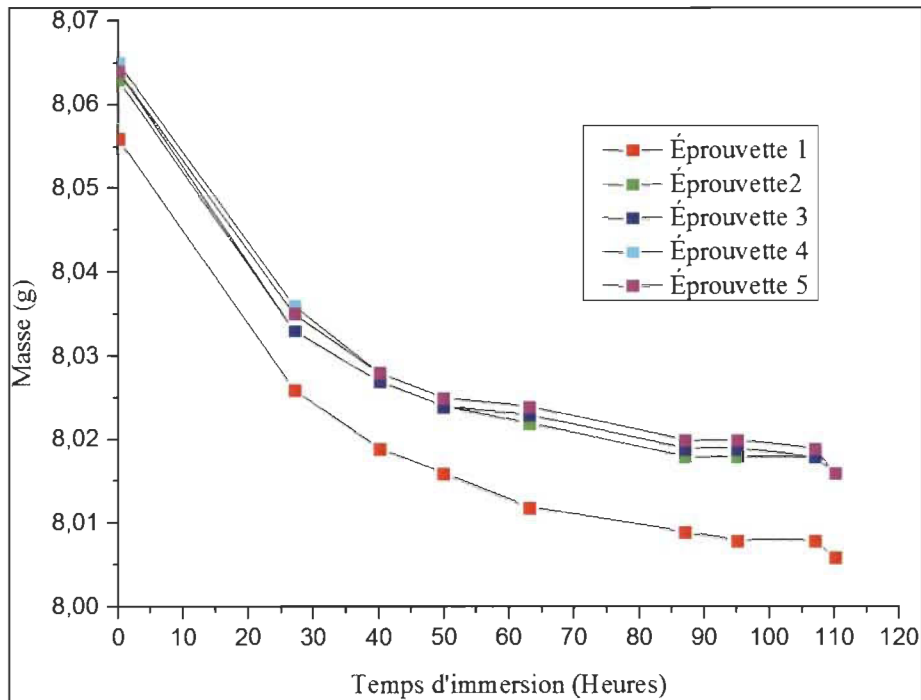
Le tableau (IV.2) récapitule les résultats expérimentaux de perte de masse de cinq éprouvettes suite à un test de séchage à une température de 75°C, la vitesse de séchage est caractérisée par un coefficient de désorption  $D_d = 11 \times 10^{-4} \text{ mm}^2 / \text{s}$ . Ce dernier est calculé de la même façon dont le coefficient de diffusion est calculé, en utilisant la formule de l'équation (39).

**Tableau IV. 2** Évolution de la masse des éprouvettes dans un essai de séchage à 75°C.

Temps (h)	Masse (g) Éprouvette1	Masse (g) Éprouvette2	Masse (g) Éprouvette3	Masse (g) Éprouvette4	Masse (g) Éprouvette5
0	8,056	8,063	8,064	8,065	8,064
27	8,026	8,033	8,033	8,036	8,035
40	8,019	8,027	8,027	8,028	8,028
50	8,016	8,024	8,024	8,025	8,025
63	8,012	8,022	8,023	8,024	8,024
87	8,009	8,018	8,019	8,02	8,02
95	8,008	8,018	8,019	8,02	8,02
107	8,008	8,018	8,018	8,019	8,019
110	8,006	8,016	8,016	8,016	8,016
D <sub>d</sub> (mm <sup>2</sup> /s)	0,0011	0,0011	0,0011	0,0011	0,0011

La figure (IV.10) présente l'évolution de la perte de masse due à l'évaporation d'eau pour (05) éprouvettes mises au four à 75 °C pendant 110 heures, on remarque une perte de masse qui suit une loi exponentielle et une bonne reproduction des tests à part l'éprouvette (1), qui pourra être due à la présence de plus de cavités dans cette éprouvette, permettant ainsi de perdre plus de poids par rapport aux autres éprouvettes.





**Figure IV. 10** Évolution de perte de masse en fonction du temps du PP/Chanvre séché au four à 75°C.

La figure (IV.11) regroupe des courbes de prise de masse en immersion à 80°C pour six (6) éprouvettes en polypropylène/chanvre et trois (3) éprouvettes en polypropylène seul (PP) suivis d'un essai de séchage pour trois (3) éprouvettes, un résultat attendu concernant la prise de masse des éprouvettes en PP qui ne dépasse pas 0.21%, qui est très négligeable devant celle des éprouvettes PP/chanvre, qui atteint une valeur moyenne maximale de 7.33%. Ce qui met en évidence l'importante contribution des fibres de chanvre dans l'absorption d'eau. Les courbes de prise de masse présentent une chute légère après avoir atteintes la saturation, ce phénomène peut être dû à l'effet de la température qui provoque le déplacement des particules d'Eau dans le sens inverse après que l'équilibre est atteint, ou encore à la perte de masse des éprouvettes vu qu'un dépôt de matière est observé au fond du bain en particulier les hautes températures. Le séchage des éprouvettes saturées a permis de regagner la masse initiale des éprouvettes dans un espace de 36 heures.

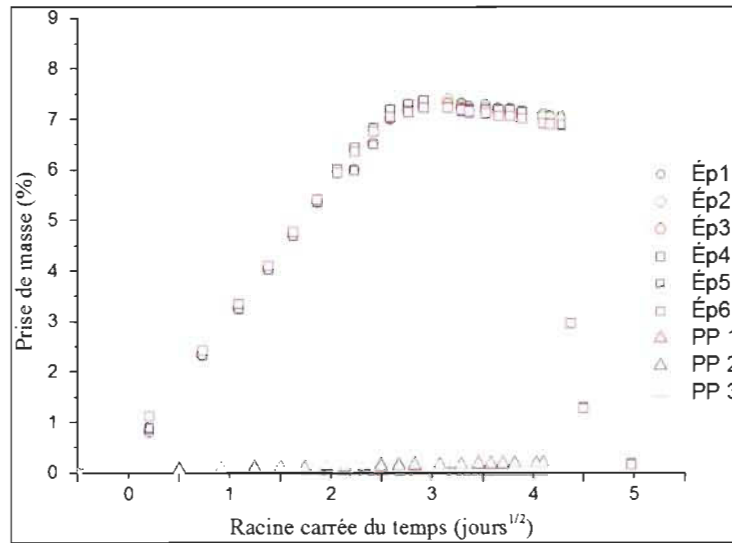


Figure IV. 11 Évolution de la prise de masse en immersion suivie d'un séchage à 80°C.

#### IV.5 Effet de la température sur la prise de masse

La vitesse de la plupart des réactions chimiques augmente avec l'accroissement de la température. C'est le cas de la diffusion d'eau dans notre matériau, où on l'observe clairement sur la figure (IV.9), qui montre la variation de la vitesse de diffusion en fonction de la température, elle augmente avec l'augmentation de celle-ci. Selon la théorie des collisions [54], deux molécules rentrent en réaction seulement si elles possèdent une énergie supérieure à un seuil donné appelé énergie d'activation. La constante des vitesses ( $k$ ) d'une réaction est proportionnelle à l'énergie d'activation et la température, Svante Arrhenius a proposé une loi permettant de décrire la relation entre la vitesse d'une réaction chimique, la température ( $T$ ) et l'énergie d'activation ( $E_a$ ), sous la forme de l'équation (40).

$$\ln(k) = \ln(A) - \frac{E_a}{R} \frac{1}{T} \quad (40)$$

Avec :

$k$  : constante de vitesse.

$A$  : facteur près exponentiel.

$E_a$ : énergie d'activation de la diffusion.

$R$ : constante des gaz parfaits.

$T$ : température d'essai en Kelvin.

Grâce à la théorie du complexe activé, la loi d'Arrhenius est applicable dans les réactions de solutions liquides. Le coefficient varie d'une manière exponentielle en fonction de la température. Cela peut être expliqué par le déclenchement de plusieurs types de diffusion et de réactions chimiques se produisant avec l'augmentation de la température qui accompagne la dégradation rapide des fibres et de l'interface fibre-matrice [4]. D'autre part, le plateau de saturation est relativement le même quel que soit la température, le temps nécessaire pour atteindre ce plateau de saturation dépend de la vitesse de pénétration des particules d'eau dans le matériau et par conséquent de la température du milieu. Les courbes de la figure (IV.9) nous montrent que la diffusion n'est pas tout à fait Fickienne à cause de l'absence de la partie linéaire du modèle de Fick, on voit mieux cette courbure pour les températures basses 20 °C et 40 °C. Le tableau (IV.3) résume les différents paramètres de la cinétique de diffusion d'eau dans le composite, les coefficients de diffusion initiaux et les masses à la saturation pour chaque température.

**Tableau IV. 3** Paramètres de diffusion déterminés expérimentalement à différentes températures.

T (K)	Ms (%)	$D_0$ (mm <sup>2</sup> /jours)	R (J/mol K)	1/RT (mol/J)	$d_0$ (m <sup>2</sup> /s)	Ea (kJ/mol)
293,15	7.559	$6.516 \cdot 10^{-3}$	8,3145	$4,1028 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022
313,15	7.852	$2.579 \cdot 10^{-2}$	8,3145	$3,8407 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022
333,15	7.57	$8 \cdot 10^{-2}$	8,3145	$3,6102 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022
353,15	7.58	$2.722 \cdot 10^{-1}$	8,3145	$3,4057 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022

Avec Ms,  $D_0$ , R et T sont respectivement la masse à la saturation, le coefficient initial de diffusion, la constante des gaz parfaits et la température prise en degré Kelvin.

Shahzad, A, [55] présente une étude de vieillissement en immersion sur un composite en polyester-fibres de chanvre. Ce dernier présente une cinétique de diffusion Fickienne, caractérisée par un coefficient de diffusion  $D = 7,52 \cdot 10^{-2}$  mm<sup>2</sup>/jour et une masse à la saturation  $M_s = 16\%$ , atteinte après 3700 heures d'immersion. Dans un autre travail [16], le polypropylène renforcé à 30% en fraction massique par des fibres de chanvre traitées à 150°C avec un agent de couplage (Epolene C-26), présente un coefficient de diffusion entre 0.09 mm<sup>2</sup>/jour et 0.1mm<sup>2</sup>/jour et une masse à la saturation entre 8.96% et 8.24% durant des essais de vieillissement en humidité relative de 80%. Comparativement aux résultats de la littérature, notre matériau présente un coefficient de diffusion très petit.

La figure (IV.12) représente l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la température en degré Kelvin. Il en découle que le coefficient suit la loi d'Arrhenius[56, 57]. On peut donc écrire le coefficient de diffusion sous la forme de l'équation (44).

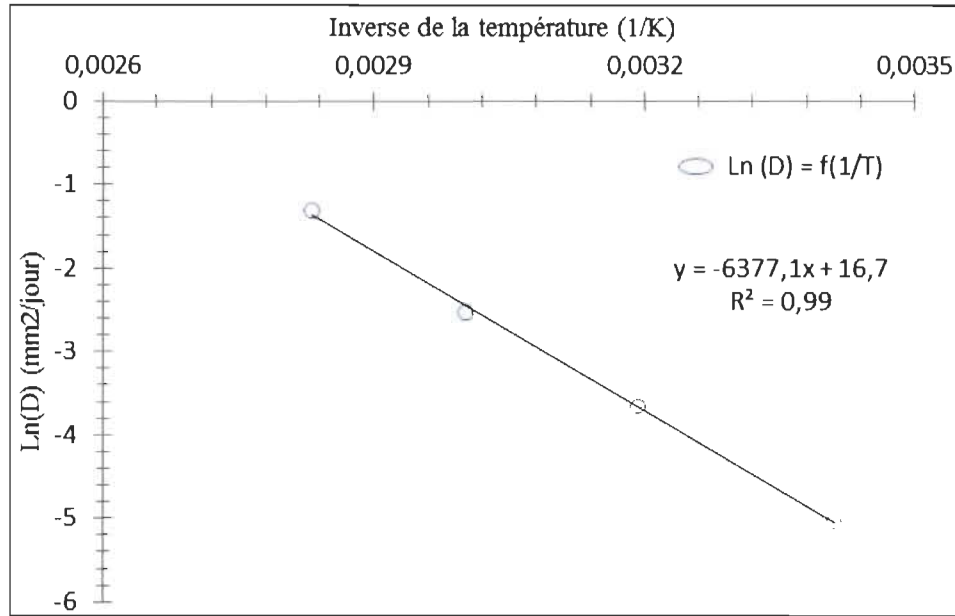


Figure IV. 12 Variation du coefficient de diffusion en fonction de la température.

$$\text{Ln}(D_0) = -\frac{6377.1}{T} + 16.7 \quad (41)$$

$$D_0 = e^{\left(\frac{-6377.1}{T} + 16.7\right)} = e^{(16.7)} \times e^{\left(\frac{-6377.1}{T}\right)} \quad (42)$$

$$D_0 = e^{(16.7)} \times e^{\left(\frac{-53022.3}{R \times T}\right)} \quad (43)$$

$$D_0(T) = d_0 e^{\left(\frac{E_a}{RT}\right)} \quad (44)$$

$d_0$  étant facteur de fréquence ou indice de perméabilité d'eau dans le matériau, sa valeur est celle du coefficient de diffusion à une température infinie, en ( $\text{mm}^2/\text{j}$ ).

En connaissant l'énergie d'activation ainsi que l'indice de perméabilité on peut déterminer le coefficient de diffusion  $D'_0$  à n'importe quelle température  $T'$ , en connaissant la valeur du coefficient de diffusion  $D_0$  à la température  $T$ , en se servant de la formule (40).

$$\ln(D_0) = \ln(d_0) - \frac{E_a}{RT} \quad (45)$$

$$\Rightarrow \ln(D'_0) = \ln d_0 - \frac{E_a}{RT'} \quad (46)$$

$$\Rightarrow \ln(D'_0) - \ln(D_0) = \frac{E_a}{RT} - \frac{E_a}{RT'} \quad (47)$$

$$\Rightarrow \ln\left(\frac{D'_0}{D_0}\right) = \frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T'}\right) \quad (48)$$

$$\Rightarrow D'_0 = D_0 e^{\left(\frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T'}\right)\right)} \quad (49)$$

#### IV.6 Conclusion

La cinétique de diffusion isotherme d'eau dans le composite de matrice polypropylène renforcé par des fibres courtes de chanvre a été examinée pour quatre températures (20°C, 40°C, 60°C, 80°C) dans l'eau distillée à l'aide d'un bain isothermique. Les résultats expérimentaux montrent que le coefficient de diffusion est très sensible à la température du milieu dont il dépend proportionnellement et par conséquent le temps nécessaire pour atteindre le plateau de saturation. Le coefficient de diffusion augmente de  $6.516 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{jour}$  à  $2.722 \cdot 10^{-1} \text{ mm}^2/\text{jour}$  en passant de 20°C à 80°C. La masse à la saturation reste relativement la même pour les différentes températures d'essais. Il s'avère que le processus d'absorption ne peut être décrit par le modèle de Fick en raison de l'absence de la partie linéarité de la courbe de diffusion. Un nouveau modèle basé sur le modèle classique de Fick, obtenu par l'introduction d'un coefficient de diffusion variable dans le temps fera l'objet du chapitre (IV).

## **CHAPITRE V**

# **ÉTUDE PAR ÉLÉMENTS FINIS ET SIMULATION NUMÉRIQUE**

## V.1 Introduction

Dans le présent chapitre, la modélisation de la prise d'humidité par le matériau composite à matrice thermoplastique (polypropylène) renforcé par des fibres naturelles (CFN) en provenance du chanvre est faite en utilisant la méthode des éléments finis. Cette dernière s'avère en effet de large utilisation dans la résolution des équations aux dérivées partielles [58].

La simulation du phénomène de diffusion d'humidité dans le matériau étudié est réalisée par analogie avec le transfert de chaleur, cette étude vise à reproduire les résultats expérimentaux de l'étude d'absorption d'eau dans les CFN en proposant un modèle capable de prédire la teneur en eau prise par le matériau immergé dans l'eau pour une température donnée et à un temps de fonctionnement donné.

La diffusion d'humidité ou le transfert de masse dans les composites est caractérisé par plusieurs paramètres. L'un des plus importants de ces paramètres s'agit de la vitesse à laquelle cette diffusion se produit, qui est à son tour caractérisée par le coefficient de diffusion effectif.

Plusieurs études traitent la diffusion d'humidité dans les composites, dans la majorité des cas, la modélisation de ce processus est faite analytiquement ou la diffusivité massique est considérée constante. On cite quelques travaux comme Wilhelm. Jost [59] qui a utilisé le modèle de Fick avec un coefficient de diffusion constant pour modéliser la prise de masse en eau dans le composite. P. K. Kushwaha et al. [60] ont employé le processus de Fick pour l'étude de diffusion d'eau dans un composite en Bamboo-Polyester, idem pour [61] ou les composites hybrides en polypropylène/fibre chanvre/fibre de verre suit le modèle de Fick dans leur absorption d'eau. Toutefois, la loi de Fick ne peut être généralisée. Certain cas de diffusion ne répondent pas à cette loi, parmi les modèles non Fickien, on trouve le modèle de Langmuir [30] à deux plateaux de saturation, ou encore le modèle qui est plus pertinent pour notre étude et le moins traité à savoir le modèle de diffusion à diffusivité variable dans le temps. Y. Weitsman [62] présente une étude de diffusion avec un coefficient de diffusion dépendant du temps appliqué à la diffusion d'humidité dans les composites. Il pose comme hypothèse que le coefficient de diffusion est très sensible à la température et la variation de cette dernière dans le temps conduit à un coefficient de diffusion dépendant du temps. Entre autres, R.-J. Yeh et al. [63] présentent une étude de diffusion à deux niveaux décrivant le comportement d'adsorption



d'humidité de résines d'ester de cyanate. Le premier niveau est Fickien et le deuxième est caractérisé par un coefficient de diffusion décroissant dans le temps.

Les démarches de résolution du problème de diffusion de particules d'eau dans notre matériau se résument à deux étapes principales :

**Démarche analytique :**

Simulation de la solution analytique de l'équation de Fick, équation (65).

**Démarche éléments finis :**

- (1) Modélisation par la méthode des éléments finis des équations caractéristiques qui gouvernent le phénomène de transfert de masse.
- (2) Simulation du phénomène de prise d'humidité pour différentes conditions avec COSMOS/M en utilisant l'analogie thermique.
- (3) Construction d'un programme informatique sous Visual basic. Basé sur les équations discrétisées par éléments finis issus de l'étape (1) et les résultats générés par la simulation dans l'étape (2), ce programme calcul l'évolution de la prise de masse dans le temps.

**V.2 Diffusion d'humidité et analogie thermique**

La diffusion d'humidité est donnée par l'équation de Fick sous sa forme tridimensionnelle, équation (50).

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (50)$$

Dans notre cas le matériau est considéré homogène ce qui conduit à :  $D = D_x = D_y = D_z$ . En tenant compte de cette hypothèse, l'équation (50) peut s'écrire sous la forme de l'équation (51).

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad (51)$$

Avec, C étant la concentration locale en humidité, D le coefficient de diffusion, x, y, z les coordonnées locales et t le temps. L'équation différentielle de diffusion d'humidité décrite par l'équation (50 ou 51) est analogue à celle de la diffusion de chaleur. Par conséquent, la résolution de l'équation de Fick, équation (50 ou 51) peut être faite par



analogie avec le phénomène de diffusion thermique [64]. Cette démarche permet d'utiliser un solveur par éléments finis en transfert de chaleur. La différence entre ces deux phénomènes de diffusion réside dans le fait que la concentration en humidité est discontinue aux interfaces du matériau, tandis que la température est continue [65]. De ce fait, la simulation de la diffusion massique dans le composite peut être faite sur le logiciel COSMOS/M en passant par l'analogie thermique. La diffusion de la chaleur pour un solide homogène et isotrope est exprimée par l'équation (52).

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \left( \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) \quad (52)$$

Avec :  $\alpha = \frac{k_x}{\rho C_p} = \frac{k_y}{\rho C_p} = \frac{k_z}{\rho C_p}$  pour un milieu isotrope,  $\alpha$  est la diffusivité thermique,  $k_x, k_y, k_z$  la conductivité thermique dans les directions spatiales,  $T$  est la température et  $t$  le temps.

À partir des deux équations (51) et (52) on établit l'analogie entre les deux phénomènes de diffusion, le tableau (V.1) résume cette analogie.

**Tableau V. 1** Analogie entre les paramètres de diffusion thermique et de la diffusion massique.

Paramètres	Variable	Diffusivité
Diffusion thermique	T (K)	$\alpha$ (m <sup>2</sup> /s)
Diffusion massique	C (kg/m <sup>3</sup> )	D (m <sup>2</sup> /s)

$$\mathbf{D} \equiv \alpha \rightarrow \mathbf{k} \equiv \mathbf{D}, \rho = 1, \text{ et } C_p = 1 \quad (53)$$

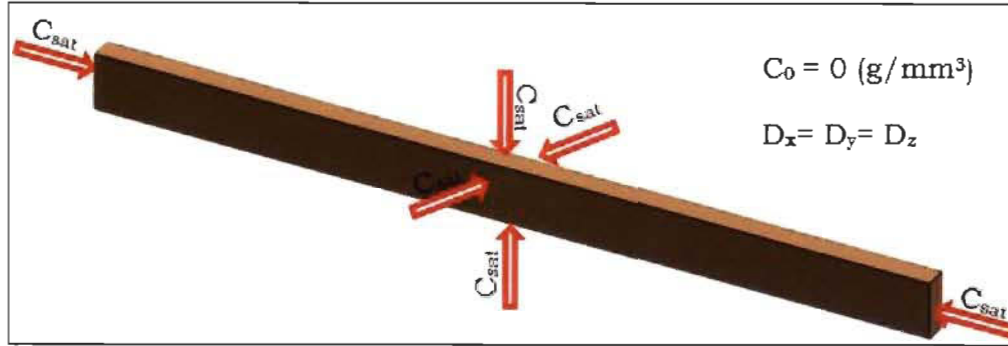
### V.3 Modélisation par éléments finis

La modélisation par éléments finis des équations de prise de masse passe par deux étapes. Premièrement, le transfert de masse est modélisé sur COSMOS/M par analogie avec le transfert de chaleur. Cette étape nous fournit l'évolution spatiotemporelle de la concentration. Deuxièmement, un programme informatique sous Visual Basic calcule l'évolution de la prise de masse dans le temps. Ce programme importe les résultats de modélisation sur COSMOS/M et les injecte dans l'équation donnant la prise de masse à partir de la concentration, sous sa forme discrétisée avec la méthode des éléments finis.

#### V.3.1 Étude de cas sur COSMOS/M

Dans cette partie, la simulation des cas opérés expérimentalement a été faite. Ces simulations visent à reproduire la distribution spatiale et temporelle de la concentration

dans l'éprouvette et de calculer la prise de masse. L'éprouvette est immergée dans l'eau, toutes ses facettes sont en contact avec l'eau, comme le montre la figure (V.1).



**Figure V. 1** Illustration de la simulation de test d'immersion avec imposition de conditions initiales et aux limites sur (1/8) d'éprouvette de dimensions ( $75 \times 5 \times 2 \text{ mm}^3$ ).

### V.3.1.1 Conditions initiales et aux limites

La concentration imposée sur les facettes de l'éprouvette  $C_{sat}$ , les coefficients de diffusion, ainsi que les masses des éprouvettes pour les températures opérées dans la partie expérimentale sont représentées dans le tableau (V.2).

**Tableau V. 2** Les paramètres caractérisant la diffusion de l'humidité dans le matériau.

T (K)	$M_0$ (g)	$M_{sat}$ (g)	$M_{sat}$ (%)	$C_{sat}$ (g/mm <sup>3</sup> )	$D_0$ (mm <sup>2</sup> /jours)	$D_{moy}$ (mm <sup>2</sup> /jours)
293,15	8.03	8.708	8.443	$1.13 \cdot 10^{-4}$	$6.516 \cdot 10^{-3}$	$1,09 \cdot 10^{-2}$
313,15	8.033	8.705	8.365	$1.12 \cdot 10^{-4}$	$2.579 \cdot 10^{-2}$	$4,674 \cdot 10^{-2}$
333,15	8.016	8.623	7.572	$1.01167 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-2}$	$1,352 \cdot 10^{-1}$
353,15	8.03	8.64	7.596	$1.01667 \cdot 10^{-4}$	$2.722 \cdot 10^{-1}$	$3,735 \cdot 10^{-1}$

Les valeurs des coefficients de diffusion initiaux et moyens sont calculées à partir des pentes initiales et moyennes respectivement des courbes de prise de masse par la formule de l'équation (54).

$$D_0 = \pi \left( \frac{P \cdot h}{4 \cdot M_{sat}} \right)^2 \quad (54)$$

Avec,  $D_0$ ,  $D_{moy}$ ,  $P$ ,  $M_{sat}$  et  $h$  représentent respectivement le coefficient initial de diffusion, le coefficient moyen de diffusion, la pente initiale de la courbe de prise de masse, la masse à la saturation et l'épaisseur de l'éprouvette.

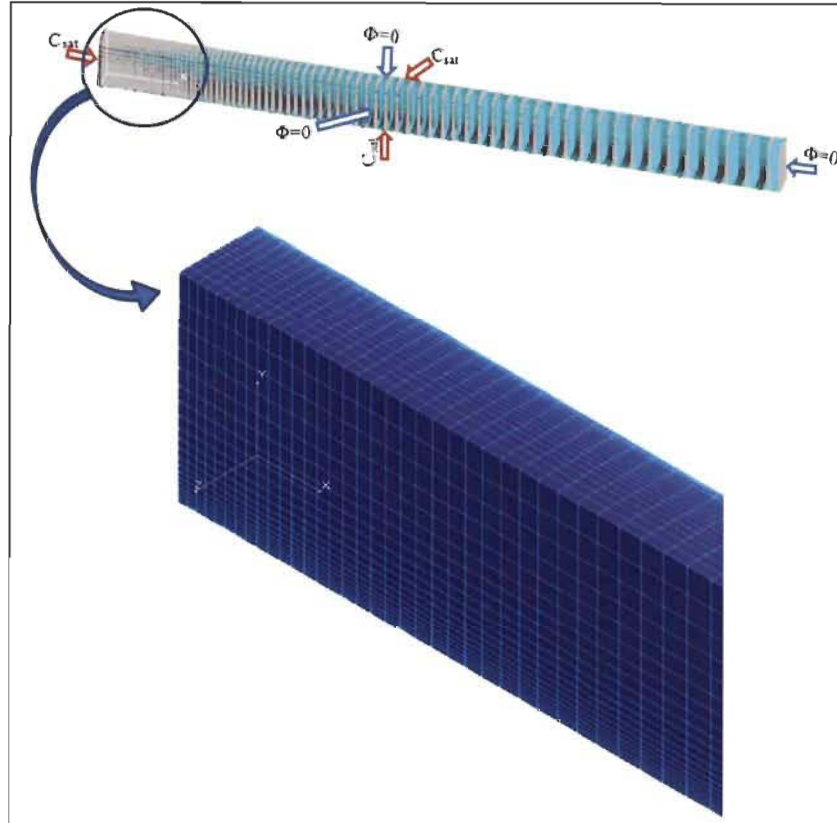
La concentration initiale de l'eau dans l'éprouvette est considérée comme nulle, les valeurs des concentrations à la saturation sont calculées par la répartition de la prise de masse en eau sur la totalité du volume de l'éprouvette, voir équation (55).

$$C_{sat} = \frac{(M_{sat} - M_0)}{Vol} = \frac{(M_{sat} - M_0)}{L \times l \times h} \quad (55)$$

Avec,  $M_{\text{sat}}$ ,  $C_{\text{sat}}$ ,  $M_0$  et Vol présentent respectivement la masse à la saturation, la concentration à la saturation, la masse initiale et le volume de l'éprouvette.

### V.3.1.2 Maillage et résultats

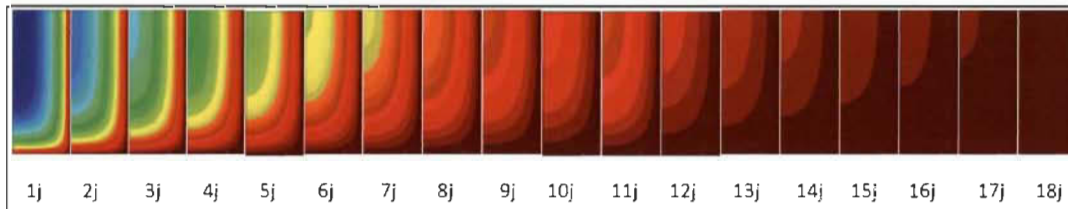
Dans cette partie, un maillage paramétrique du volume avec des éléments hexaédriques linéaires à 8 nœuds est utilisé. La finesse du maillage est un paramètre important dans la précision des résultats. Plus le maillage est fin, plus la solution est précise et proche de la solution réelle. Sauf que nous sommes confrontés à un problème en raffinant le maillage sur la totalité du volume, qui se traduit par un très grand nombre d'éléments, de coordonnées et de concentrations à traiter. Cette option coûte beaucoup de temps et requiert un processus assez puissant pour traiter la solution. Pour ces raisons, un maillage variable a été appliqué sur l'éprouvette dans le but de raffiner le maillage sur tous les côtés du volume. Ce qui permet d'avoir des éléments assez petits sur le contour du volume et des éléments de plus en plus grands en se dirigeant vers le centre du volume. Cela nous a permis de contourner le problème de conditions aux limites, qui ont tendance à fausser les valeurs de la concentration aux frontières du domaine. De plus, on utilise une étude par éléments finis avec des conditions de symétrie permettant de ne modéliser qu'un huitième du domaine et donc d'avoir un maillage plus dense (et donc plus de précision au niveau des résultats) à temps de calcul égal, tel qu'illustré à la figure (V.2).



**Figure V. 2** Illustration de la simulation de test d'immersion en utilisant une étude de symétrie et un maillage variable avec imposition de conditions initiales et aux limites.

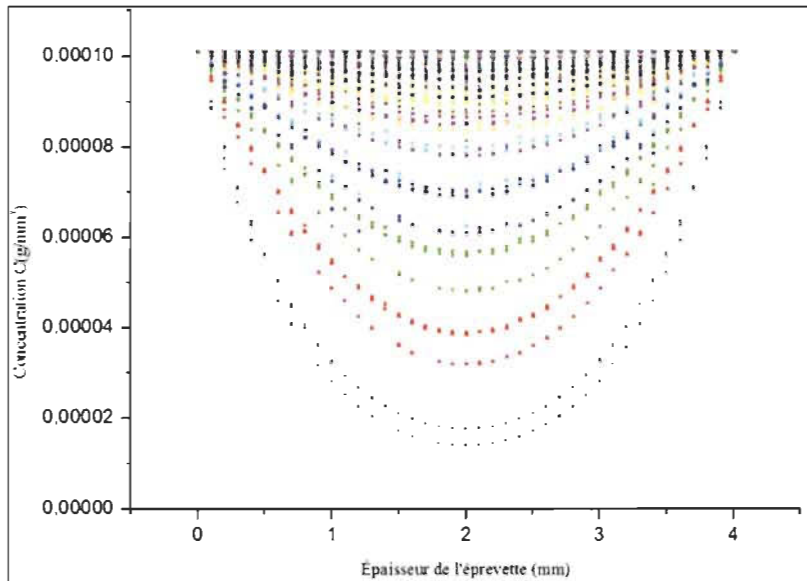
Dans ce cas de figure, on impose une concentration égale à  $C_{sat}$  sur les facettes externes en contact avec l'eau et un flux de masse nul sur les facettes internes délimitant les parties symétriques ( $\Phi=0$ ).

La figure (V.3) montre la distribution spatiale de la concentration et son évolution dans le temps, dans une coupe longitudinale d'un huitième de l'éprouvette, représentée avec les conditions aux limites sur la figure (V.2).



**Figure V. 3** Évolution de la concentration pendant 18 jours d'immersion à  $80^{\circ}\text{C}$ , sur une coupe longitudinale d'un huitième d'éprouvette (étude symétrique, maillage variable).

La figure (V.4) représente l'évolution de la distribution spatiale de la concentration le long de l'épaisseur de l'éprouvette pour chaque pas de temps.



Rapport-gratuit.com  
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Figure V. 4 Distribution de la concentration le long de l'épaisseur de l'éprouvette en fonction du temps.

### V.3.2 Calcul de la prise de masse sur Visual Basic

À partir des données inférées par la simulation sur COSMOS/M, un programme en Visual Basic (VB) calcule la prise de masse de l'éprouvette après vieillissement dans l'eau selon l'organigramme de la figure (V.5) qui montre les principales étapes du programme.

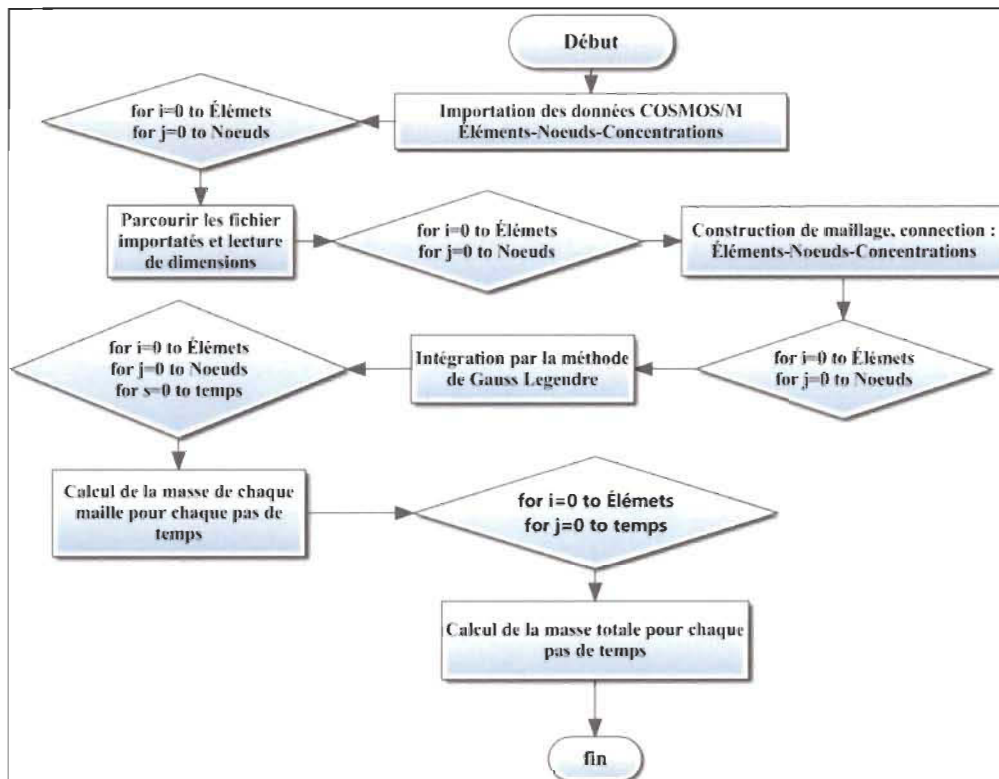


Figure V. 5 Organigramme explicatif des démarches de simulation.

La simulation sur COSMOS/M permet seulement de calculer la diffusion de la concentration dans l'éprouvette par analogie avec le phénomène de diffusion de chaleur. Tandis que, nous souhaitons avoir la prise de masse, afin de permettre une certaine comparaison avec les résultats expérimentaux. Pour parvenir à cet objectif, les résultats de distribution de la concentration générés par le logiciel COSMOS/M, ont été implémentés dans un programme numérique construit sous langage Visual Basic. Ce programme calcule l'évolution de la prise de masse avec le temps, en utilisant la méthode des éléments finis.

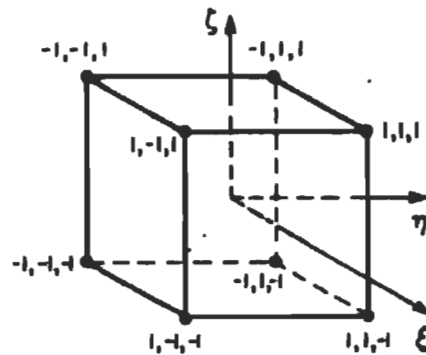
La prise de masse au temps  $t$  d'un solide de hauteur ( $h$ ), de largeur ( $l$ ) et de longueur ( $L$ ) est exprimée en fonction de la concentration par l'équation (56) :

$$M_t = \int_0^h \int_0^l \int_0^L C(x, y, z, t) dx. dy. dz \quad (56)$$

On procède au calcul de cette intégrale par la méthode des éléments finis. Cette méthode fait introduire des éléments de références facilitant le calcul. Pour ce faire, on effectue un changement de base, de la base locale vers la base de l'élément de référence. L'équation (56) devient après changement de base :

$$M_t = \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 C(x(\xi, \eta, \zeta), y(\xi, \eta, \zeta), z(\xi, \eta, \zeta), t). \det [j]. d\xi. d\eta. d\zeta \quad (57)$$

$\xi, \eta, \zeta$  : étant les coordonnées spatiales du repère de l'élément de référence et  $\det [j]$  étant le déterminant de la matrice Jacobienne. L'élément de référence utilisé dans la discrétisation de l'équation (54) est l'élément hexaédrique linéaire, composé de (8) nœuds comme le montre la figure (V.6).



**Figure V. 6** Élément de référence cubique linéaire utilisé dans le maillage et la discrétisation par éléments finis, tirée de [66].

Le changement de base se fait à l'aide de fonctions d'interpolation et leurs dérivées par rapport aux coordonnées de la base de l'élément de référence. Ces fonctions

d'interpolation sont disponibles dans la littérature. Le tableau (V.3) représente les fonctions d'interpolation et leurs dérivées pour un élément de référence cubique linéaire tel que celui utilisé dans cette étude.

**Tableau V. 3** Fonctions d'interpolation et dérivées pour un élément de référence cubique linéaire, tiré de [66].

Nombre de nœuds	$\frac{1}{\gamma}\{N\}$	$\frac{1}{\gamma}\left\{\frac{\partial N}{\partial \xi}\right\}$	$\frac{1}{\gamma}\left\{\frac{\partial N}{\partial \eta}\right\}$	$\frac{1}{\gamma}\left\{\frac{\partial N}{\partial \zeta}\right\}$	$\gamma$
1	$a_2 b_2 c_2$	$-b_2 c_2$	$-a_2 c_2$	$-a_2 b_2$	1/8
2	$a_1 b_2 c_2$	$b_2 c_2$	$-a_1 c_2$	$-a_1 b_2$	
3	$a_1 b_1 c_2$	$b_1 c_2$	$a_1 c_2$	$-a_1 b_1$	
4	$a_2 b_1 c_2$	$-b_1 c_2$	$a_2 c_2$	$-a_2 b_1$	
5	$a_2 b_2 c_1$	$-b_2 c_1$	$-a_2 c_1$	$a_2 b_2$	
6	$a_1 b_2 c_1$	$b_2 c_1$	$-a_1 c_1$	$a_1 b_2$	
7	$a_1 b_1 c_1$	$b_1 c_1$	$a_1 c_1$	$a_1 b_1$	
8	$a_2 b_1 c_1$	$-b_1 c_1$	$a_2 c_1$	$a_2 b_1$	

Avec  $a_1 = 1 + \xi$  ;  $a_2 = 1 - \xi$   
 $b_1 = 1 + \eta$  ;  $b_2 = 1 - \eta$   
 $c_1 = 1 + \zeta$  ;  $c_2 = 1 - \zeta$

Pour effectuer le passage entre l'élément réel et les éléments de référence, on a besoin des transformations entre l'espace de coordonnées cartésiennes et l'espace de coordonnées paramétriques. La relation entre les deux espaces est donnée par les équations (58, 59 et 60).

$$\begin{aligned}
 \mathbf{x}(\xi, \eta, \zeta) = \frac{1}{8} & \left( (1 - \xi)(1 - \eta)(1 - \zeta) (1 + \xi)(1 - \eta)(1 - \zeta) (1 + \xi)(1 + \eta)(1 - \zeta) \right. \\
 & \left. (1 - \xi)(1 + \eta)(1 - \zeta) (1 - \xi)(1 - \eta)(1 + \zeta) (1 + \xi)(1 - \eta)(1 + \zeta) (1 + \xi)(1 + \right. \\
 & \left. \eta)(1 + \zeta) (1 - \xi)(1 + \eta)(1 + \zeta) \right) > \left. \begin{matrix} \mathbf{x}_1 \\ \mathbf{x}_2 \\ \mathbf{x}_3 \\ \mathbf{x}_4 \\ \mathbf{x}_5 \\ \mathbf{x}_6 \\ \mathbf{x}_7 \\ \mathbf{x}_8 \end{matrix} \right\} (58)
 \end{aligned}$$

$$y(\xi, \eta, \zeta) = \frac{1}{8} \begin{matrix} < (1 - \xi)(1 - \eta)(1 - \zeta) (1 + \xi)(1 - \eta)(1 - \zeta)(1 + \xi)(1 + \eta)(1 - \\ \zeta)(1 - \xi)(1 + \eta)(1 - \zeta)(1 - \xi)(1 - \eta)(1 + \zeta)(1 + \xi)(1 - \eta)(1 + \zeta)(1 + \xi)(1 + \\ \eta)(1 + \zeta) (1 - \xi)(1 + \eta)(1 + \zeta) > \end{matrix} \begin{matrix} y_1 \\ y_2 \\ y_3 \\ y_4 \\ y_5 \\ y_6 \\ y_7 \\ y_8 \end{matrix} \quad (59)$$

$$z(\xi, \eta, \zeta) = \frac{1}{8} \begin{matrix} < (1 - \xi)(1 - \eta)(1 - \zeta) (1 + \xi)(1 - \eta)(1 - \zeta)(1 + \xi)(1 + \eta)(1 - \\ \zeta)(1 - \xi)(1 + \eta)(1 - \zeta)(1 - \xi)(1 - \eta)(1 + \zeta)(1 + \xi)(1 - \eta)(1 + \zeta)(1 + \xi)(1 + \\ \eta)(1 + \zeta) (1 - \xi)(1 + \eta)(1 + \zeta) > \end{matrix} \begin{matrix} z_1 \\ z_2 \\ z_3 \\ z_4 \\ z_5 \\ z_6 \\ z_7 \\ z_8 \end{matrix} \quad (60)$$

La matrice Jacobienne est donnée par l'équation (61), le déterminant de cette matrice permet de transformer l'intégrale entre les deux espaces cartésien et paramétrique.

$$\frac{1}{8} \begin{matrix} < (-1 + \eta)(1 - \zeta) (1 - \eta)(1 - \zeta)(1 + \eta)(1 - \zeta) (-1 - \eta)(1 - \zeta)(-1 + \eta)(1 + \zeta)(1 - \eta)(1 + \zeta) (1 + \eta)(1 + \zeta)(-1 - \eta)(1 + \zeta) > \\ < (-1 + \xi)(1 - \zeta)(-1 - \xi)(1 - \zeta)(1 + \xi) (1 - \zeta)(1 - \xi) (1 - \zeta)(-1 + \xi) (1 + \zeta)(-1 - \xi) (1 + \zeta)(1 + \xi) (1 + \zeta) (1 - \xi) (1 + \zeta) > \\ < (1 - \xi)(-1 + \eta) (1 + \xi)(-1 + \eta)(1 + \xi)(-1 - \eta)(1 - \xi)(-1 - \eta)(1 - \xi)(1 - \eta) (1 + \xi)(1 - \eta)(1 + \xi)(1 + \eta) (1 - \xi)(1 + \eta) > \end{matrix} [j] = \quad (61)$$

L'équation (57) peut s'écrire comme sous la forme de l'équation (62).

$$M_t = \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \langle N_i \rangle \{ C_i^j \} \cdot \det [j] \cdot d\xi \cdot d\eta \cdot d\zeta \quad (62)$$

Où les variables  $N_i, C_i^j, det$  et  $[j]$ , présentes respectivement les fonctions d'interpolation, la concentration au temps  $j$  et au nœud  $i$ , le déterminant et le jacobien.

En remplaçant les fonctions d'interpolation et le déterminant de la matrice Jacobienne par leurs expressions, l'équation (62) devient sous la forme de l'équation (63).



$$M_t = \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \frac{1}{8} < (1 - \xi)(1 - \eta) (1 - \zeta) (1 + \xi) (1 - \eta)(1 - \zeta) (1 + \xi)(1 + \eta) (1 - \zeta)(1 - \xi) (1 + \eta)(1 - \zeta) (1 - \xi)(1 - \eta) (1 + \zeta)(1 + \xi) (1 - \eta)(1 + \zeta) (1 + \xi)(1 + \eta) (1 + \zeta)(1 - \xi) (1 + \eta)(1 + \zeta) > \begin{pmatrix} C_1^j \\ C_2^j \\ C_3^j \\ C_4^j \\ C_5^j \\ C_6^j \\ C_7^j \\ C_8^j \end{pmatrix} \times \det \left( \frac{1}{8} \begin{pmatrix} < (-1+\eta)(1-\zeta) (1-\eta)(1-\zeta)(1+\eta)(1-\zeta) (-1-\eta)(1-\zeta)(-1+\eta)(1+\zeta)(1-\eta)(1+\zeta) (1+\eta)(1+\zeta)(-1-\eta)(1+\zeta) > \\ < (-1+\xi)(1-\zeta) (-1-\xi)(1-\zeta)(1+\xi)(1-\zeta)(1-\xi)(1-\zeta)(-1+\xi)(1+\zeta)(-1-\xi)(1+\zeta)(1+\xi)(1+\zeta) (1-\xi)(1+\zeta) > \\ < (1-\xi)(-1+\eta) (1+\xi)(-1+\eta)(1+\xi)(-1-\eta)(1-\xi)(-1-\eta)(1-\xi)(1-\eta) (1+\xi)(1-\eta)(1+\xi)(1+\eta) (1-\xi)(1+\eta) > \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_1 & y_1 & z_1 \\ x_2 & y_2 & z_2 \\ x_3 & y_3 & z_3 \\ x_4 & y_4 & z_4 \\ x_5 & y_5 & z_5 \\ x_6 & y_6 & z_6 \\ x_7 & y_7 & z_7 \\ x_8 & y_8 & z_8 \end{pmatrix} \right) d\xi d\eta d\zeta \quad (63)$$

L'équation (62) est incorporée dans le programme mis au point sous Visual Basic. L'intégrale est calculée par la méthode de Gauss-Legendre à trois dimensions avec la méthode produit. Étant donné que le polynôme intégré est de degré maximum égal à 4, on choisit la méthode à trois points d'intégration qui permet d'intégrer exactement un polynôme de degré inférieur ou égal à 5. La méthode s'annonce comme suit :

En posant  $f(\xi, \eta, \zeta) = \langle N_i \rangle \{ C_i^j \} \cdot \det [j]$ , l'intégrale dans l'équation (62) ou (63) nous conduit à l'équation (64).

$$M_t = \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \langle N_i \rangle \{ C_i^j \} \cdot \det [j] \cdot d\xi \cdot d\eta \cdot d\zeta = \sum_i^3 \sum_j^3 \sum_k^3 w_i \cdot w_j \cdot w_k \cdot f(\xi_i, \eta_j, \zeta_k) \quad (64)$$

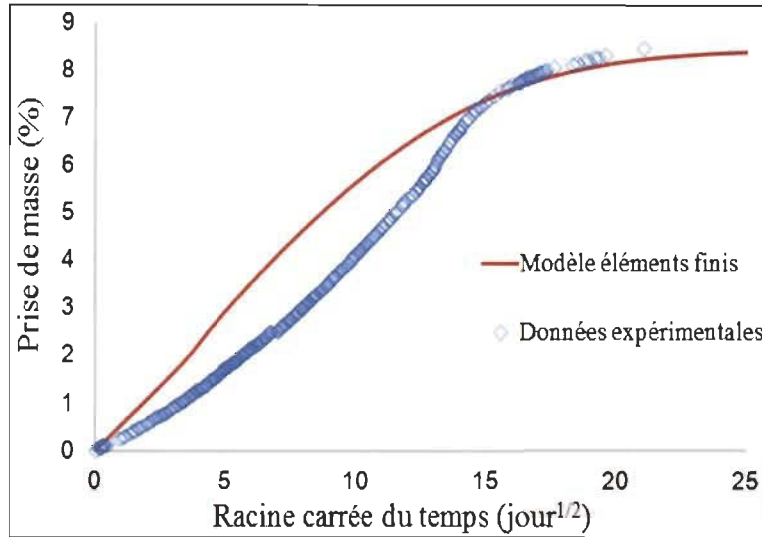
Le tableau (V.4) résume les valeurs des poids d'intégration  $w_i, w_j$  et  $w_k$  et les coordonnées  $\xi_i, \eta_j$  et  $\zeta_k$  utilisées dans l'intégration par la méthode produit de Gauss-Legendre.

**Tableau V. 4** Paramètres d'intégration de Gauss-Legendre, tiré de [66]

$w_i, w_j, w_k$	$\xi_i$	$\eta_j$	$\zeta_k$
8/9	0	0	0
8/5	$-\sqrt{3/5}$	$-\sqrt{3/5}$	$-\sqrt{3/5}$
8/5	$+\sqrt{3/5}$	$+\sqrt{3/5}$	$+\sqrt{3/5}$

La figure (V.7) présente une comparaison entre les résultats expérimentaux de prise d'eau à 20°C et le modèle éléments finis, obtenu à partir du modèle de Fick classique avec un

coefficient de diffusion constant tel que présenté ci-dessous. Les résultats expérimentaux de la figure (V.7) montrent clairement la nature non linéaire de la diffusion d'eau dans le matériau. La simulation par éléments finis du modèle de Fick classique est loin de la courbe expérimentale.



**Figure V. 7** Courbe de prise de masse en fonction du temps : comparaison entre résultats expérimentaux et le modèle éléments finis à 20 °C.

### V.3.3 Simulation de la solution analytique de l'équation Fick

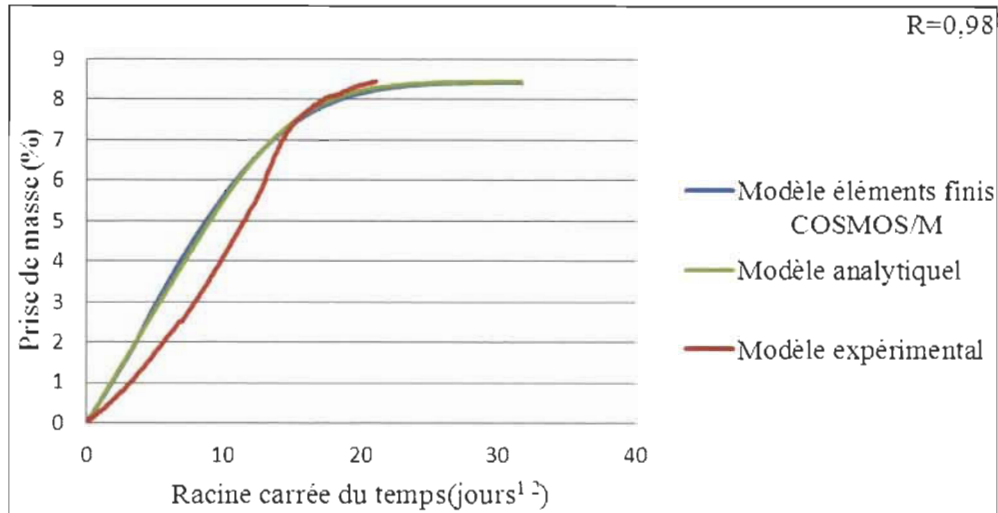
La prise de masse obtenue par l'intégration de la solution de l'équation de Fick sous sa forme unidimensionnelle est donnée par l'équation (65) pour une éprouvette d'épaisseur (h). Elle permet de calculer la masse absorbée au temps (t), ce qui permet une comparaison avec les résultats expérimentaux et une validation du modèle éléments finis.

$$M_t = M_{sat} \left( 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-\frac{D_0(2n+1)^2\pi^2}{h} t\right) \right) \quad (65)$$

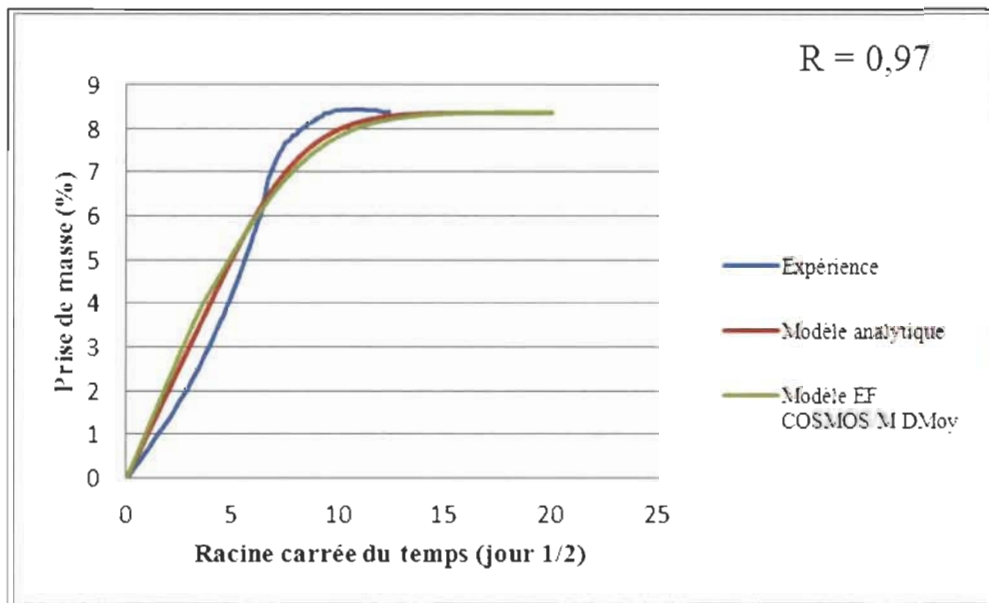
#### V.3.3.1 Comparaison des deux modèles analytique et éléments finis (COSMOS/M – Visual Basic)

Les figures (V.8, V.9, V.10 et V.11) représentent la comparaison entre le modèle analytique issu de la simulation de l'équation (65) et le modèle éléments finis simulé sur COSMOS/M et exploité par un programme Visual-Basic avec les résultats expérimentaux. Les résultats de simulation surestiment l'absorption de l'eau dans la première partie de prise d'eau, puis la prévision numérique devient plus précise par rapport aux mesures expérimentales près du plateau de saturation. Cette différence peut s'expliquer par le fait que le comportement réel d'absorption de l'eau dans ce matériau ne

pourra être considéré comme Fickien. De plus, la forme de la courbe expérimentale suggère que le coefficient de diffusion effectif (D) soit variable au cours du processus d'absorption. Ces courbes montrent une très bonne corrélation entre les deux modèles, mais loin d'être une bonne représentation des résultats expérimentaux.



**Figure V. 8** Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 20°C, étude symétrique avec raffinement de maillage.



**Figure V. 9** Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 40°C, étude symétrique avec raffinement de maillage.

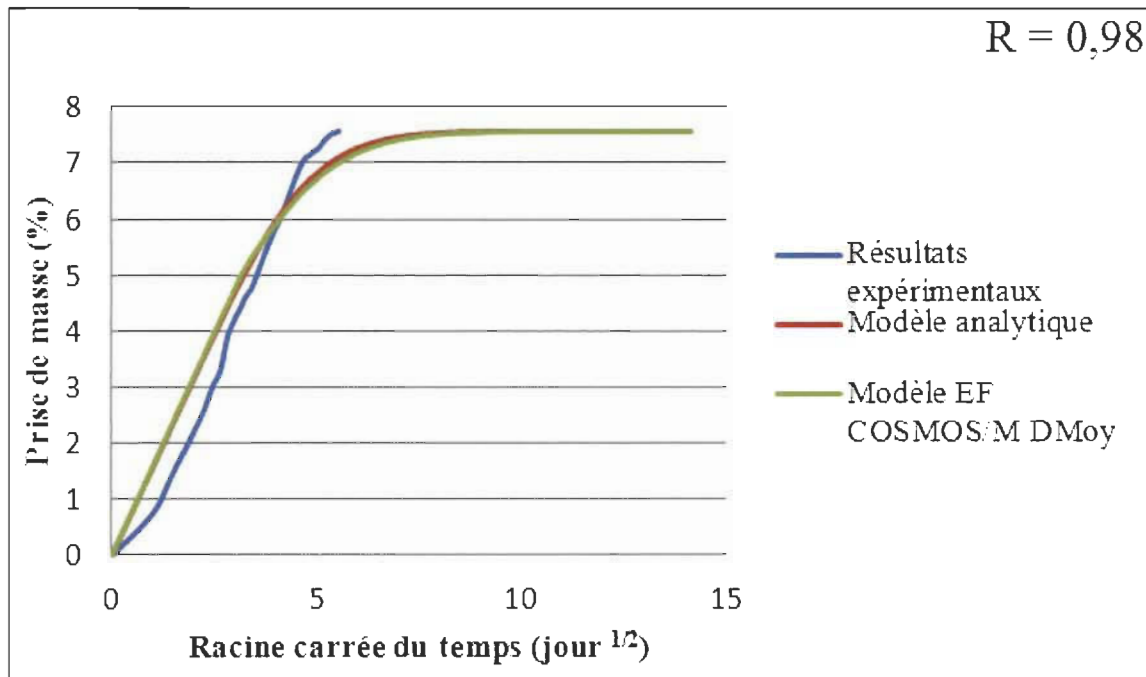


Figure V. 10 Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 60°C, étude symétrique avec raffinement de maillage.

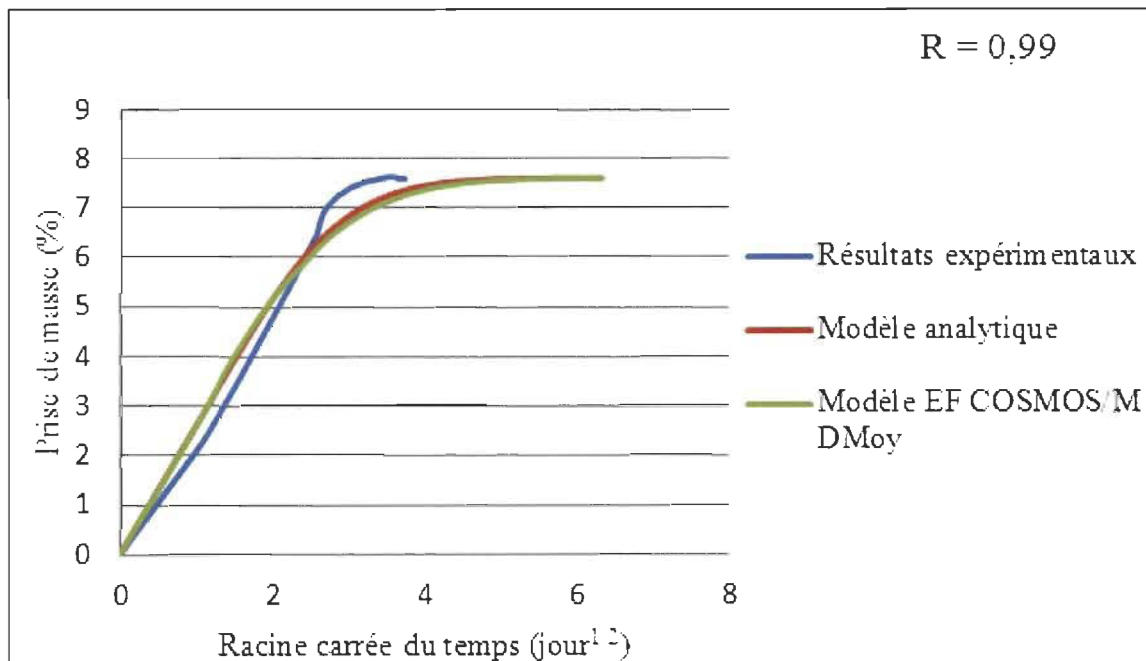


Figure V. 11 Comparaison entre le modèle analytique, le modèle EF (COSMOS/M) et les résultats expérimentaux à 80°C, étude symétrique avec raffinement de maillage.

#### **V.4 Conclusion**

Dans ce chapitre, la modélisation par éléments finis du processus de diffusion est présentée en détail. En utilisant l'analogie thermique, le problème a pu être modélisé sur COSMOS/M en prenant le modèle de Fick comme mode de diffusion. Une comparaison des résultats de simulation par élément finis (COSMOS/M – VB) et de la solution analytique de l'équation de diffusion avec les résultats expérimentaux est faite. Le modèle conçu sur la base des éléments finis présente de bonnes corrélations avec le modèle analytique issu de la simulation de l'équation (65). Néanmoins, ces deux modèles restent loin d'être représentatifs des résultats expérimentaux de prise de masse. Cela peut être dû au fait que le mode de diffusion dans les expériences est de type non Fickien.

## **CHAPITRE VI**

# **ÉLABORATION D'UN NOUVEAU MODÈLE DE DIFFUSION À DIFFUSIVITÉ VARIABLE DANS LE TEMPS**

## VI.1 Nouveau modèle non Fickien

Suite à ce qui a été présenté au chapitre quatre, l'observation des résultats expérimentaux nous indique que la cinétique de diffusion étudiée est de type non Fickien. Pour cela, les résultats expérimentaux de diffusion ne pourront pas être représentés par le modèle de l'équation (65). La pénétration de l'eau modifie la structure interne du composite, en provoquant le gonflement des fibres, des microfissures dans la matrice, et même le décollement entre fibre et matrice, ce qui vient à mon sens changer la nature du matériau et augmenter le coefficient de diffusion massique effective du composite. On propose alors de remplacer le coefficient de diffusion constant dans l'équation de Fick par un coefficient de diffusion variable dans le temps (équation (66)).

$$D(T, t) = D_0 e^{\omega t^2} \quad (66)$$

$D_0$  et  $(\omega)$  sont respectivement le coefficient initial de diffusion et le paramètre de correction. La première partie de la courbe de prise de masse en fonction du temps est découpée en plusieurs parties linéaires, chaque partie linéaire est caractérisée par une pente constante et par conséquent, par un coefficient de diffusion constant. L'évolution dans le temps des coefficients de diffusion constants, pour chaque température, est représentée sur la figure (VI.1). La formule du coefficient de diffusion décrite par l'équation (66), est donnée par la courbe de tendance ajustée à la courbe de l'évolution dans le temps des coefficients de diffusion constants.

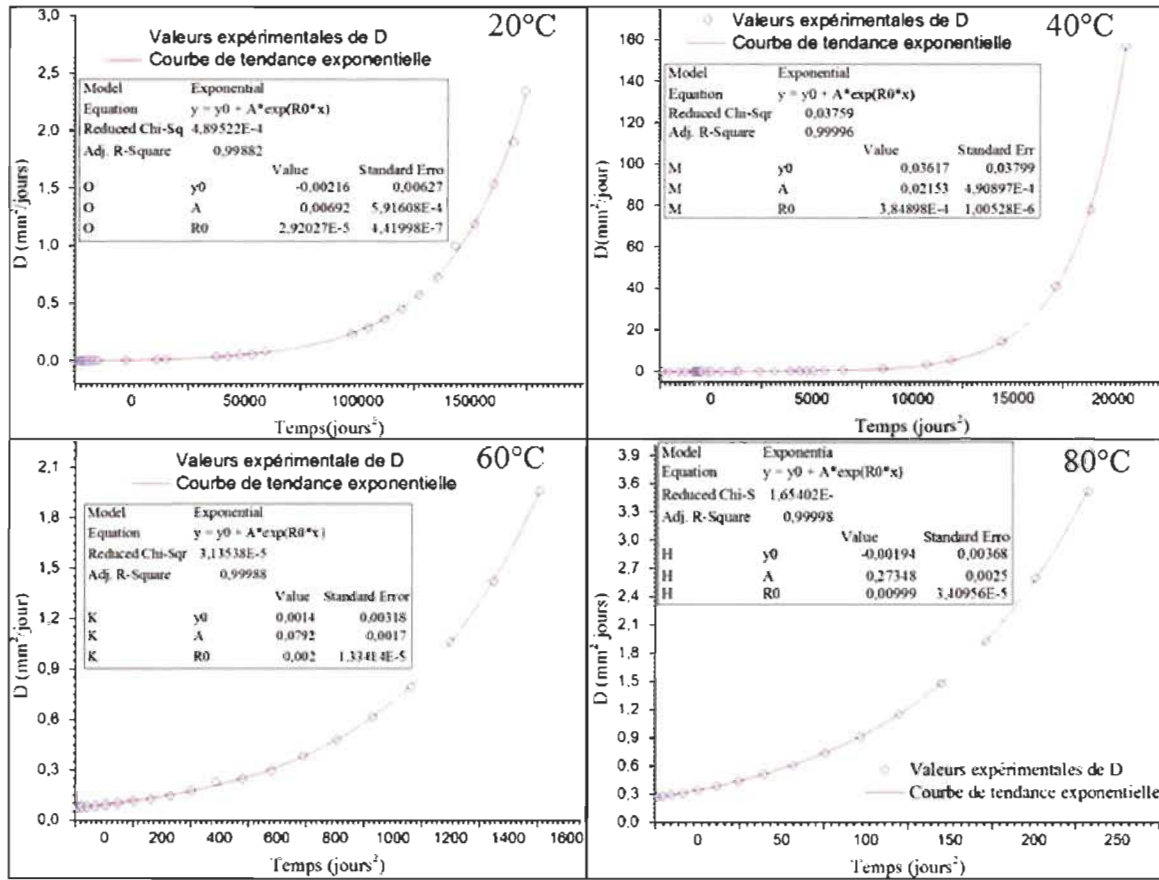


Figure VI. 1 Variations du coefficient de diffusion en fonction du temps à 20°C, 40°C, 60°C et 80°C.

En injectant l'équation (66) dans l'équation (65) on obtient le modèle de calcul de la prise d'eau avec un coefficient de diffusion variable dans le temps, équation (67).

$$M_t = M_{sat} \left( 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-\frac{D_0 e^{\omega t^2} (2n+1)^2 \pi^2}{h} t\right) \right) \quad (67)$$

Le tableau (VI.1) résume les différents paramètres du modèle, les coefficients de diffusion et les masses à la saturation pour chaque température.

Tableau VI. 1 Paramètres de diffusion déterminés expérimentalement.

T (K)	Ms (%)	$D_0$ ( $\text{mm}^2/\text{jour}$ )	R (J/mol K)	1/RT (mol/J)	$d_0$ ( $\text{m}^2/\text{jour}$ )	Ea (kJ/mol)	$\omega$ ( $\text{jour}^{-2}$ )
293,15	7.559	$6.516 \cdot 10^{-3}$	8,3145	$4,1028 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022	0.00003
313,15	7.852	$2.579 \cdot 10^{-2}$	8,3145	$3,8407 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022	0.0008
333,15	7.57	$8 \cdot 10^{-2}$	8,3145	$3,6102 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022	0.002
353,15	7.58	$2.722 \cdot 10^{-1}$	8,3145	$3,4057 \cdot 10^{-4}$	$e^{16.7}$	53,022	0.01



Avec,  $M_s$ ,  $D_0$ ,  $R$  et  $T$  sont respectivement la masse à la saturation, le coefficient initial de diffusion, la constante des gaz parfaits et la température prise en degré Kelvin. Jusqu'à présent on a vu que le coefficient de diffusion varie en fonction du temps, l'effet de la température apparait implicitement dans le coefficient initial de diffusion ( $D_0$ ), ainsi que dans le paramètre ( $\omega$ ), qui varie avec la température. Le coefficient initial de diffusion ( $D_0$ ) suit la loi d'Arrhenius [56], exprimé par l'équation (44) et détaillé au chapitre (II). Le paramètre ( $\omega$ ) est déterminé à partir des courbes de tendance ajustant les courbes de variation du coefficient de diffusion en fonction du temps, comme l'illustre la figure (VI.1). Le paramètre en question est une fonction exponentielle de la température et s'écrit sous forme de l'équation (68).

$$\omega(T) = 6.499 \times 10^{-17} \times e^{\left(\frac{T}{10.80848}\right)} \quad (68)$$

La figure (VI.2) représente l'évolution du paramètre ( $\omega$ ) en fonction de la température en degré Kelvin.

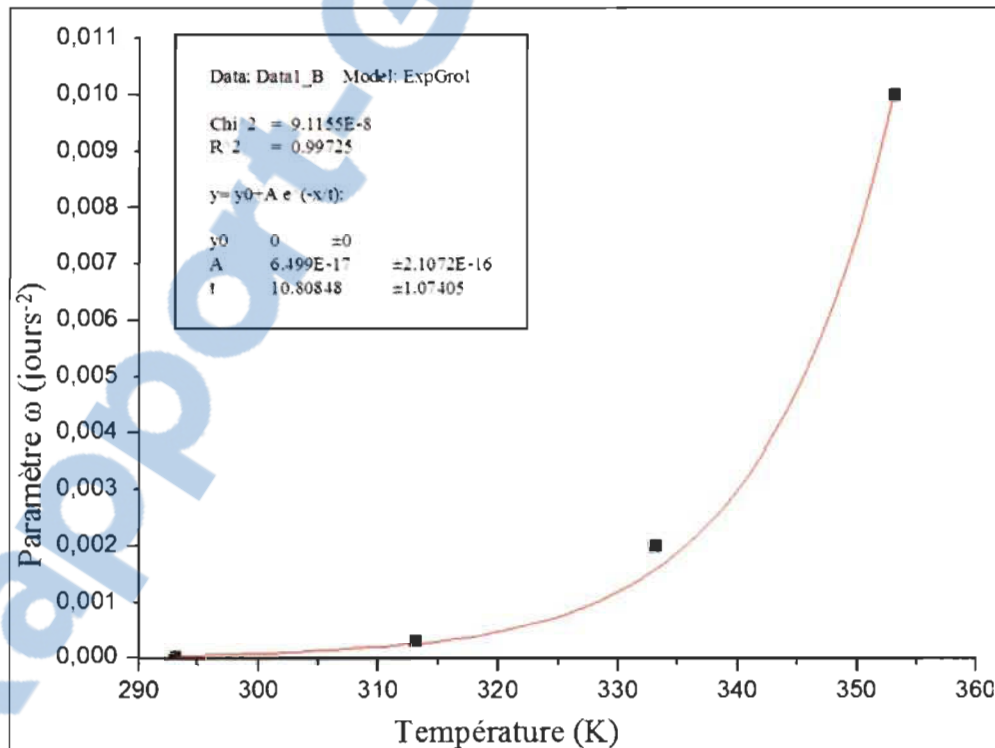
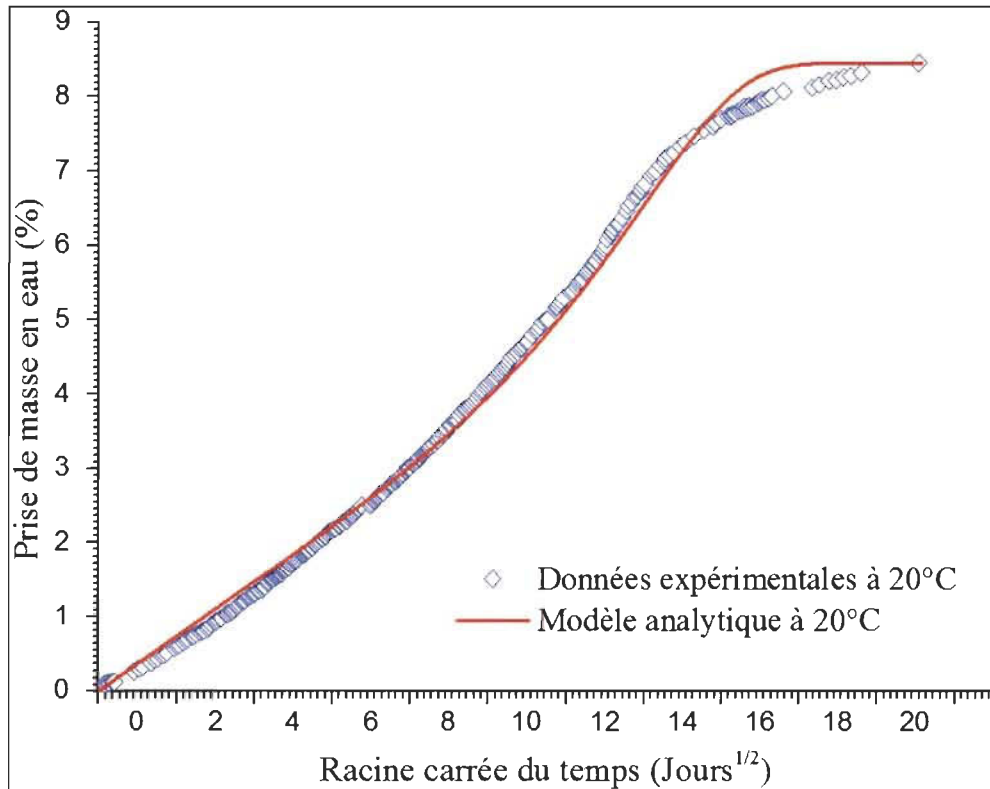


Figure VI. 2 Variation du paramètre ( $\omega$ ) en fonction de la température.

En remplaçant la valeur numérique du paramètre ( $\omega$ ) dans l'équation (66), le coefficient de diffusion s'écrit donc sous la forme d'une fonction dépendant de la température et du temps comme le montre l'équation (69).

$$D(T, t) = D_0 e^{\left( 6.499 \times 10^{-17} \times e^{\left( \frac{T}{10.80848} \right)^2} \right)^2} \quad (69)$$

En tenant compte du coefficient de diffusion variable dans le temps, exprimé dans l'équation (69). Les figures (VI.3, VI.4, VI.5, VI.6, VI.7) représentent la comparaison des résultats expérimentaux de prise d'eau avec les résultats de simulation analytique de l'équation de diffusion (équation (67)).



**Figure VI. 3** Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 20°C.

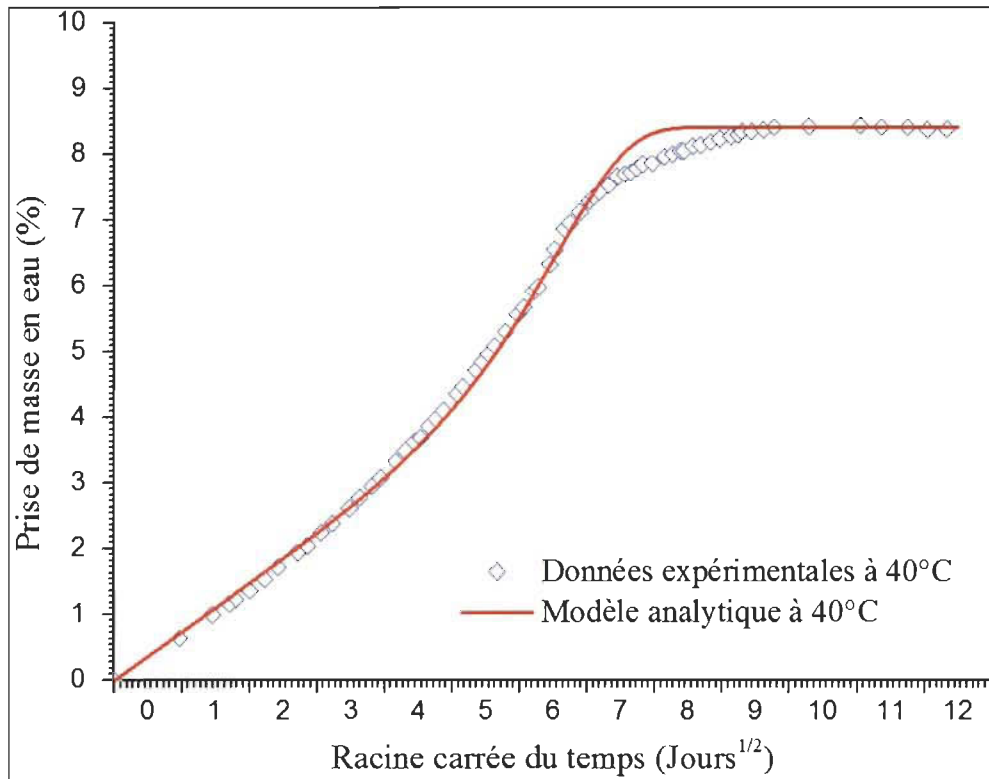


Figure VI. 4 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 40°C.

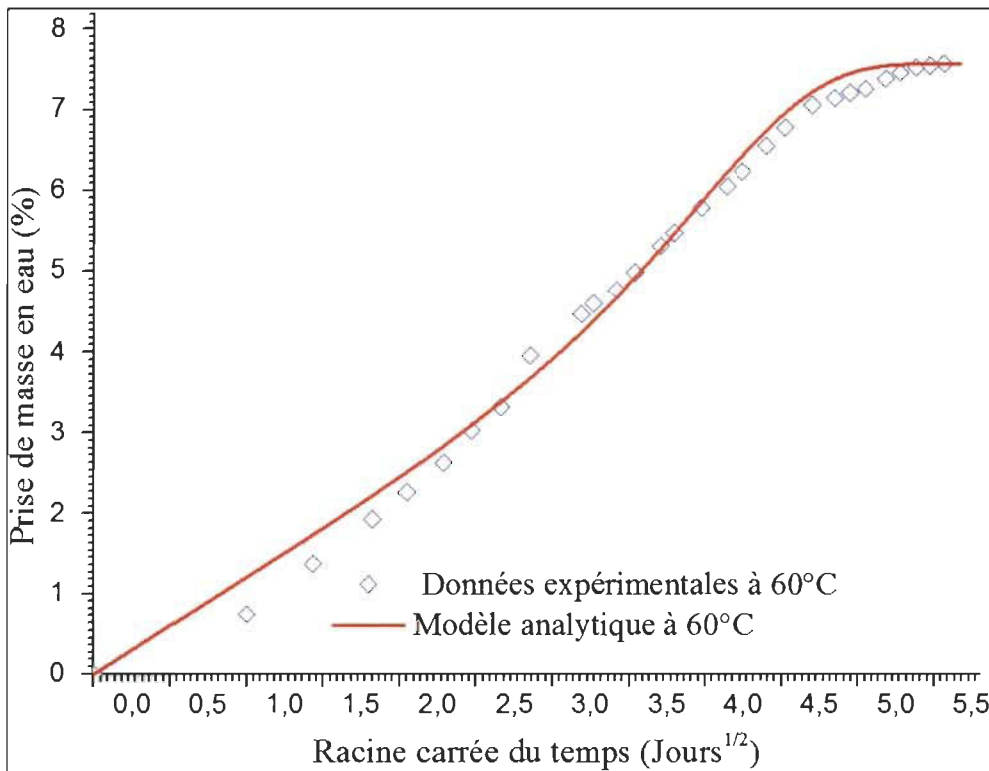


Figure VI. 5 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 60°C.

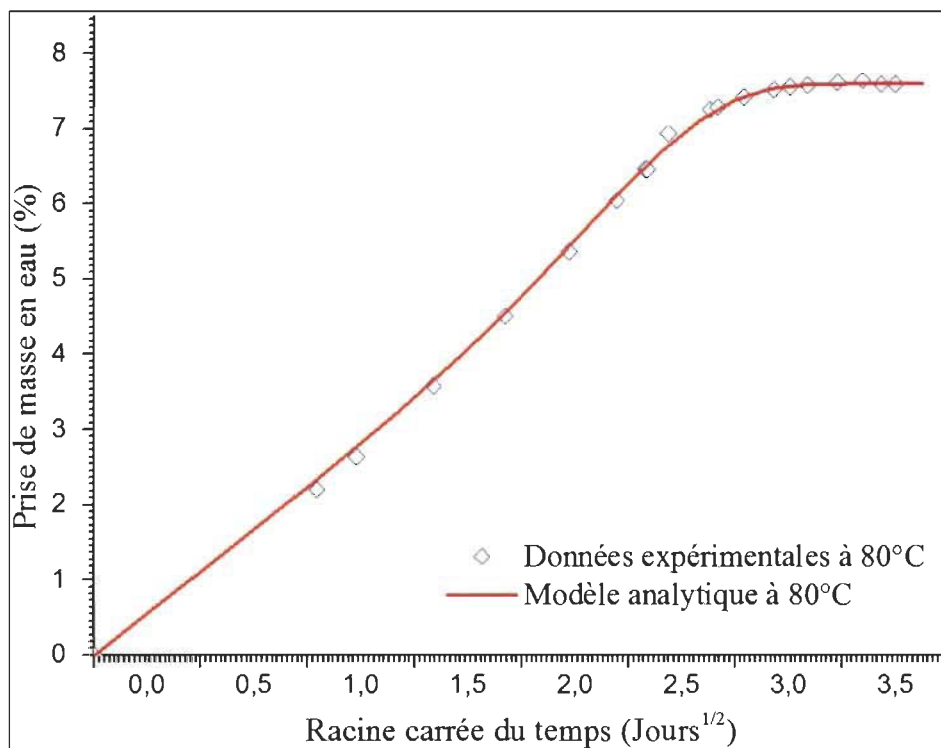


Figure VI. 6 Simulation analytique du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 80°C.

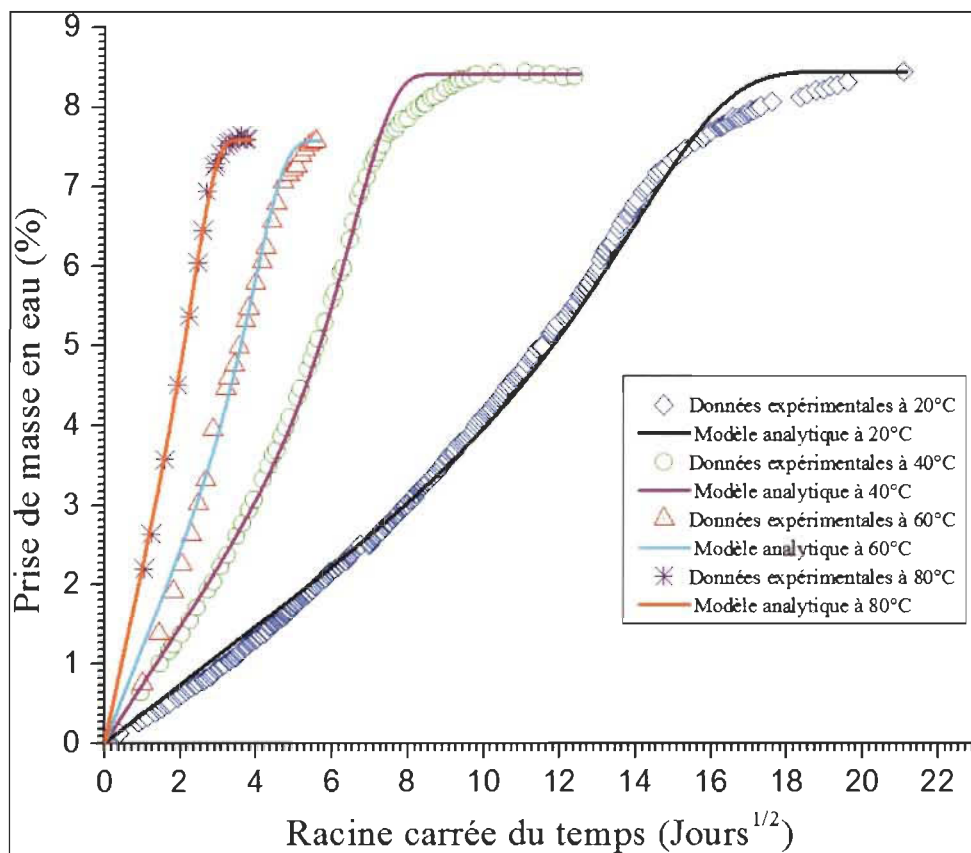


Figure VI. 7 Résultats expérimentaux de diffusion isotherme comparée avec le nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps pour les températures (20°C, 40°C, 60°C, 80°C).

## **VI.2 Modélisation par éléments finis**

La diffusion d'humidité est simulée par analogie avec la diffusion thermique dans COSMOS/M, avec la prise en compte du coefficient de diffusion croissant dans le temps. Les résultats de distribution de la concentration générés par le logiciel COSMOS/M, sont implémentés dans un programme numérique construit sous langage Visual Basic. Ce dernier permet de calculer l'évolution de la prise de masse en fonction du temps.

Les figures (VI.8, VI.9, VI.10, VI.11 et VI.12) montrent la comparaison entre les résultats expérimentaux du vieillissement hydrique à différentes températures, avec la simulation par éléments finis du nouveau modèle de diffusion à coefficient de diffusion variable dans le temps. La variation du coefficient de diffusion dans le temps peut être expliquée par les phénomènes physiques et chimiques qui se produisent lors de la pénétration d'eau dans le composite. Dans la littérature plusieurs auteurs traitent l'absorption d'eau par les composites à fibres naturelle et son effet sur les propriétés mécaniques du matériau. L'exposition à l'eau d'un composite renforcé par des fibres naturelles connues pour leur nature hydrophile, provoque des gonflements dans les fibres ce qui cause des microfissures dans la matrice et par la suite le décollement de l'interface fibre-matrice, créant ainsi des passages supplémentaires pour les particules d'eau, ce qui amplifie la vitesse pénétration d'eau [4, 67].

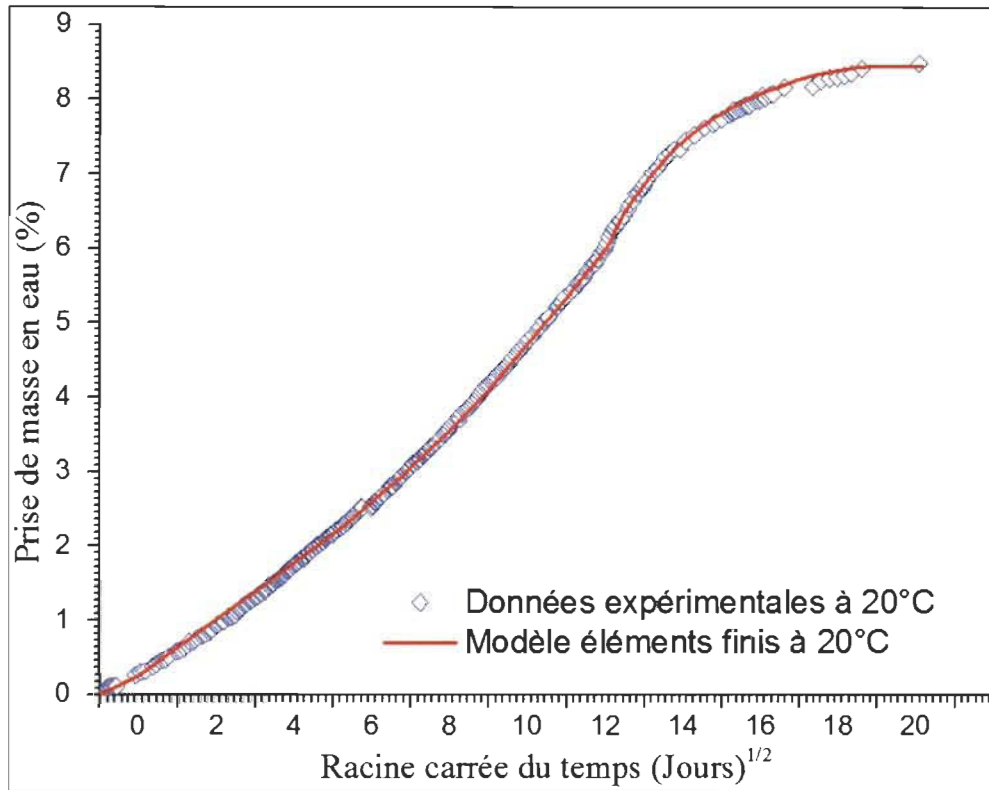


Figure VI. 8 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 20°C.

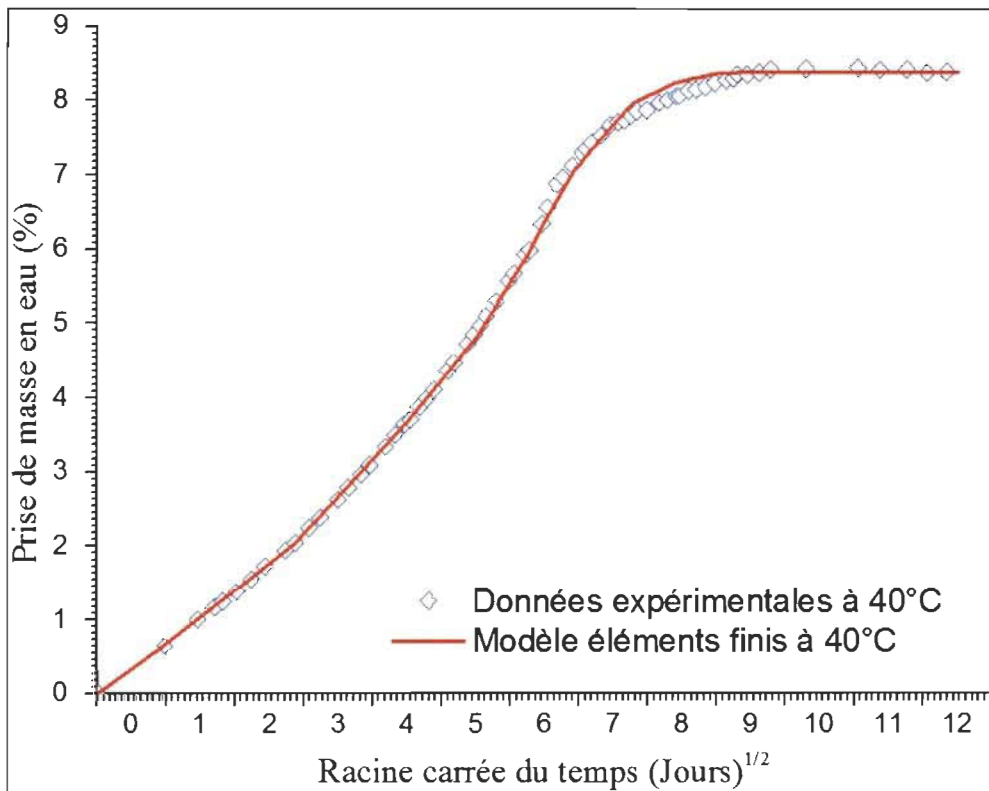


Figure VI. 9 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 40°C.

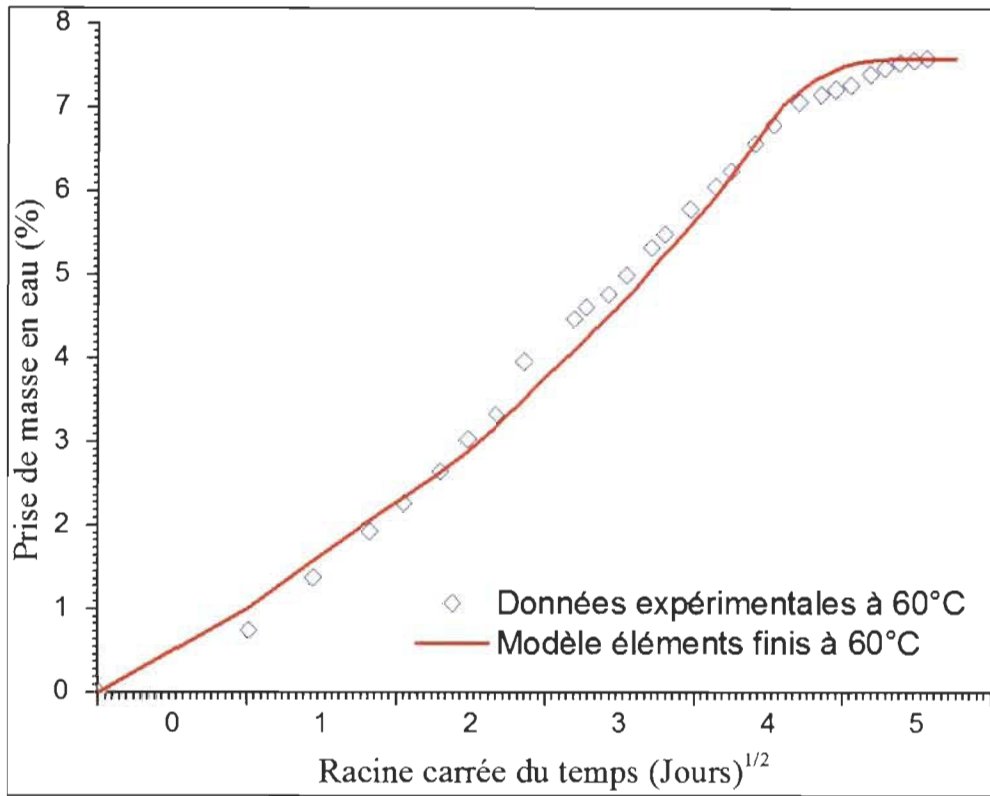


Figure VI. 10 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 60°C.

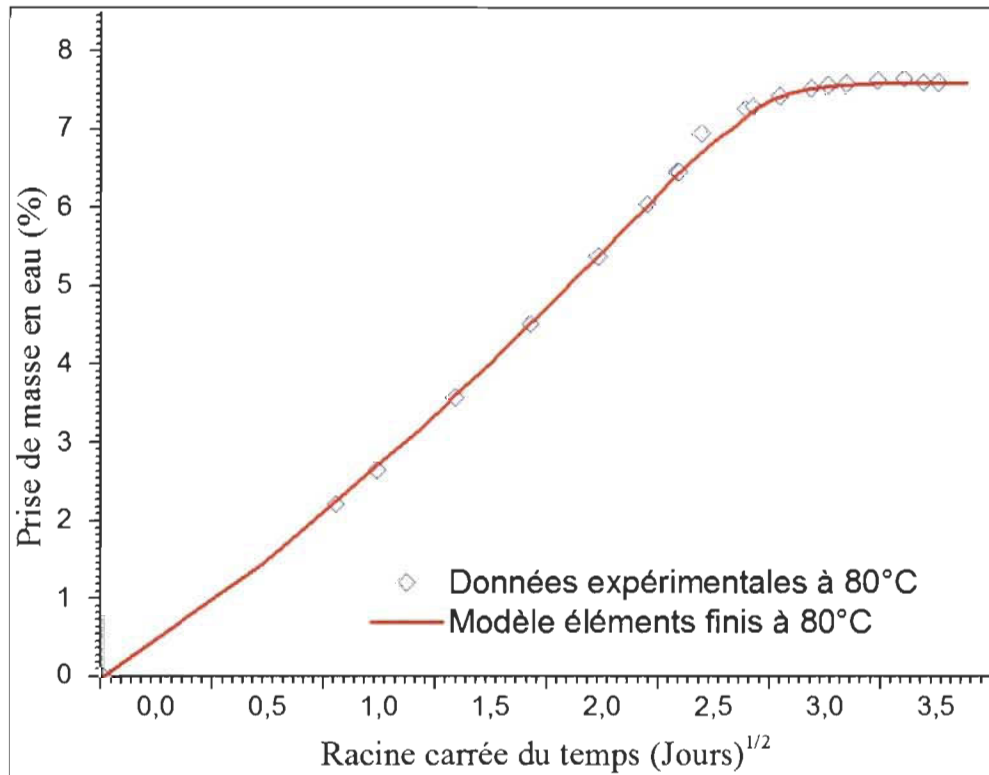
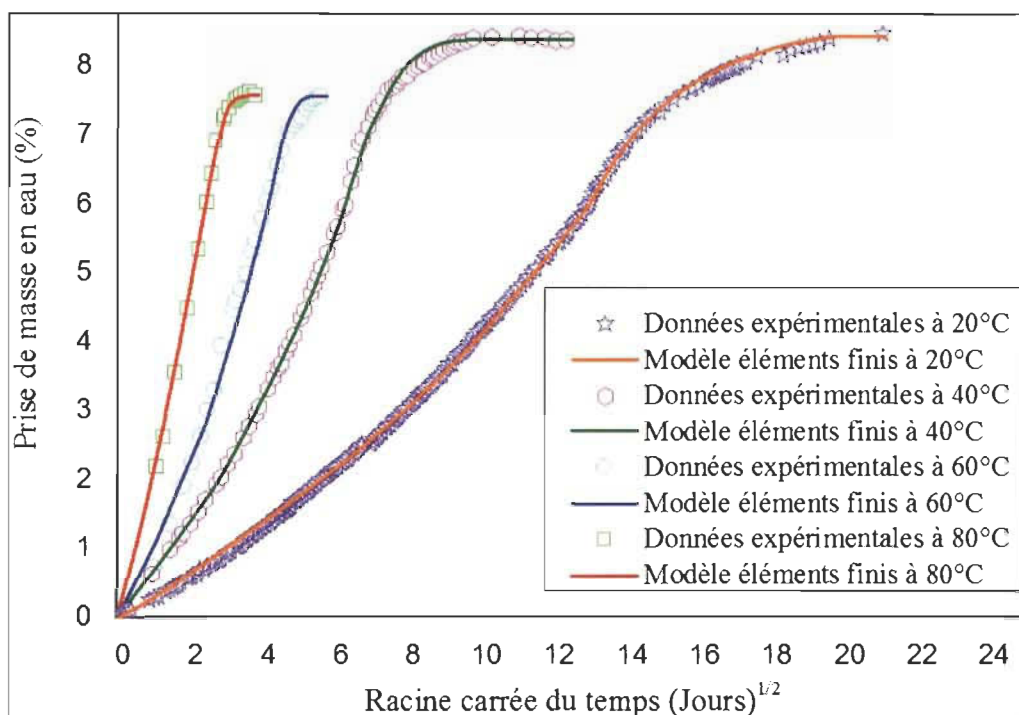


Figure VI. 11 Simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps à 80°C.



**Figure VI. 12** Résultats expérimentaux de diffusion isotherme comparée avec la simulation par éléments finis du nouveau modèle à coefficient de diffusion variable dans le temps pour les températures (20°C, 40°C, 60°C, 80°C).

### VI.3 Conclusion

Dans ce chapitre, la cinétique de diffusion d'eau dans le composite en polypropylène renforcé par des fibres courtes de chanvre a été examinée. En raison de la non-linéarité de la première partie de diffusion en fonction du temps, le processus d'absorption en immersion ne peut être décrit par le modèle de Fick. Un nouveau modèle basé sur le modèle classique de Fick, obtenu par l'introduction d'un coefficient de diffusion variable dans le temps est proposé. Le coefficient de diffusion varie exponentiellement en fonction du temps, il est obtenu d'une manière simple à partir de la courbe de tendance des coefficients de diffusion calculés sur chaque partie de la courbe de diffusion considérée linéaire. Les résultats expérimentaux montrent que le coefficient de diffusion dépend fortement de la température, par conséquent, le temps nécessaire pour atteindre le plateau de saturation en dépend pareillement. Contrairement au modèle classique de Fick avec diffusivité massique constante, le nouveau modèle proposé avec une diffusivité massique dépendant du temps présente une meilleure corrélation avec les résultats expérimentaux et décrit mieux le processus de diffusion d'eau en immersion.



**CONCLUSION GÉNÉRALE ET**  
**PERSPECTIVES**

## **Conclusion générale**

Cette étude constitue une contribution à la compréhension et la modélisation du processus de diffusion d'eau dans les composites à matrice thermoplastique renforcée par des fibres courtes de chanvre (PP/chanvre), en procédant par l'identification des différents paramètres caractéristiques du matériau. La cinétique d'absorption isotherme du polypropylène renforcé par des fibres courtes de chanvre est étudiée expérimentalement et numériquement, pour le cas de l'immersion à quatre températures (20°C, 40°C, 60°C, 80°C).

L'approche expérimentale comprend deux aspects. Le premier concerne l'effet du vieillissement hygrothermique en immersion à différentes températures sur les propriétés mécaniques du composite étudié et le second traite la cinétique d'absorption d'eau, cette dernière étant suivie par pesée sur une balance de précision de  $10^{-3}$ g.

L'effet du vieillissement hygrothermique sur le PP/chanvre est analysé, dans le but de déterminer l'évolution des propriétés mécaniques du composite après un tel vieillissement. Des tests de traction monotone et des tests de traction cyclique sont réalisés. La comparaison des différentes propriétés mécaniques des échantillons non vieillis et des échantillons vieillis en immersion dans l'eau distillée à différentes températures est faite et il en sort que :

- Toutes les propriétés mécaniques du composite sont affectées par la prise d'eau et par la température de l'essai.
- Le module de Young chute de 50%, la contrainte maximale chute de 27%, la contrainte à rupture présente une baisse de 28% et la déformation à la rupture augmente du double comparativement aux éprouvettes non vieillis.
- L'augmentation de la température conduit à une chute des propriétés mécaniques du composite qui tend à rejoindre celles de la matrice sans renfort.

Les résultats expérimentaux de prise d'eau nous révèlent des informations intéressantes.

- La première partie des courbes de prise de masse en eau est non linéaire en fonction de la racine carrée du temps, comme c'est le cas dans la diffusion de nature Fickienne.
- Le processus de diffusion d'eau dans notre matériau est de nature non Fickienne.
- Le temps d'absorption pour atteindre un niveau donné de prise d'eau diminue significativement avec l'augmentation de la température.

- le coefficient de diffusion dépend fortement de la température, celui-ci augmente de  $6.516 \cdot 10^{-3}$  à  $2.722 \cdot 10^{-1}$  ( $\text{mm}^2/\text{jour}$ ) en passant de  $20^\circ\text{C}$  à  $80^\circ\text{C}$ , et par conséquent le temps nécessaire pour atteindre le plateau de saturation diminue avec l'augmentation de la température.
- Le phénomène de diffusion d'eau dans le matériau est thermiquement activé, le coefficient de diffusion suit la loi d'Arrhenius.
- La masse à la saturation est relativement la même quelle que soit la température.
- Les deux modèles analytique et éléments finis, basés sur le modèle de Fick à coefficient de diffusion constant, présentent de bonnes corrélations, mais ils ne sont pas représentatifs des données expérimentales de prise d'eau.

Rapport-gratuit.com   
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MEMOIRE

Compte tenu de la non-linéarité de la première partie de la courbe de diffusion en fonction du temps, un nouveau modèle de prédiction pour le vieillissement du PP/chanvre en immersion est proposé dans ce travail. L'idée d'un tel modèle est venue par le remplacement du coefficient de diffusion massique constant dans le modèle de Fick par un coefficient de diffusion massique variable dans temps. Le nouveau modèle proposé est plus représentatif des résultats expérimentaux de prise d'eau que le modèle de Fick avec un coefficient de diffusion constant.

### **Perspectives**

Il serait d'abord intéressant de considérer la précision de la méthode de mesure de l'évolution de la prise de masse. Comme mentionné plus haut, d'autres méthodes de mesure pourraient être envisagées, telles que l'utilisation de la mesure par flottaison ou la mesure par pycnomètre.

D'autre part, l'effet du vieillissement par absorption d'eau est généralement couplé avec l'effet de la température et du rayonnement ultraviolet. Dans l'optique d'approfondir la compréhension de l'endommagement des CFN, il serait intéressant, pour les travaux futurs, de construire un modèle de comportement mécanique en tenant compte du vieillissement couplé des différents paramètres de sollicitation, à savoir, l'humidité, la température et le rayonnement, etc.

Pour les travaux ultérieurs, un vieillissement en humidité relative à différents pourcentages en humidité et à différentes températures serait un complément scientifique permettant de prédire l'effet du vieillissement hygrothermique pour n'importe quelles sollicitations mécaniques imposées sur le composite étudié. D'autre part, l'analyse de la diffusion d'autres fluides tels que l'huile, l'acide, l'eau de mer, l'essence, etc. serait un grand apport pour la science et l'industrie.

En plus des essais de traction, des essais mécaniques non destructifs tels que l'impulsion acoustique, les méthodes par ultrasons, l'analyse d'images par MEB seraient des outils pertinents pour le suivi de l'évolution des propriétés mécaniques des composites subissant un vieillissement quelconque. Ils permettraient de suivre un même échantillon, éliminant ainsi les effets trompeurs de la présence de défauts ou de porosités dans d'autres échantillons. Il serait également intéressant d'appliquer le nouveau modèle sur différents matériaux pour pouvoir établir un modèle générique et une loi unique décrivant le processus de diffusion dans les composites à fibres naturelles.

## Références bibliographiques

## Références bibliographiques

- [1] H. N. Rabetafika, M. Paquot, and P. Dubois, "Les polymères issus du végétal: matériaux à propriétés spécifiques pour des applications ciblées en industrie plastique," *BIOTECHNOLOGIE AGRONOMIE SOCIETE ET ENVIRONNEMENT*, vol. 10, p. 185, 2006.
- [2] A. A. Klyosov and A. A. Klesov, *Wood-plastic composites*: LibreDigital, 2007.
- [3] G. Marque, "Absorption de l'eau par les polymères," Université de Savoie, 2009.
- [4] H. Dhakal, Z. Zhang, and M. Richardson, "Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites," *Composites Science and Technology*, vol. 67, pp. 1674-1683, 2007.
- [5] A. J. Stamm and R. Seborg, "Adsorption compression on cellulose and wood. I. Density measurements in benzene," *The Journal of Physical Chemistry*, vol. 39, pp. 133-142, 1935.
- [6] A. J. Stamm and L. A. Hansen, "The bonding force of cellulosic materials for water (from specific volume and thermal data)," *Journal of Physical Chemistry*, vol. 41, pp. 1007-1016, 1937.
- [7] D. Rouison, M. Couturier, M. Sain, B. MacMillan, and B. Balcom, "Water absorption of hemp fiber/unsaturated polyester composites," *Polymer composites*, vol. 26, pp. 509-525, 2005.
- [8] C.-L. Tsai, I.-T. Hung, and T.-W. Chang, "Characterization of principal diffusivities of composites by suspension method," *Composites science and technology*, vol. 66, pp. 2837-2843, 2006.
- [9] M. Mulle and F. Collombet, "Mesures à coeur par réseaux de Bragg pour caractériser la diffusion d'humidité dans les composites= Characterising moisture diffusion in composites using embedded fiber Bragg gratings," *Recueil des résumés et comptes rendus des 16èmes Journées Nationales sur les Composites*, 2009.
- [10] A. CORDELLE, M. DRISSI-HABTI, A. FORSTER, and C. Joannie, "Effets de l'irradiation aux UV sur les propriétés mécaniques des matériaux composites polymères," *Revue des composites et des matériaux avancés*, vol. 23, 2013.
- [11] A. Rashdi, S. Sapuan, M. Ahmad, and A. Khalina, "The effects of weathering on mechanical properties of kenaf unsaturated polyester composites (kfupc)," *Polymers & polymer composites*, vol. 18, pp. 275-281, 2010.
- [12] D. Scida, M. Assarar, R. Ayad, and C. Poilâne, "Effet de l'humidité sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin," *Comptes-rendus des 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17)*, 2011.
- [13] V. Placet, "Influence de traitements hygrothermiques sur les propriétés mécaniques de composites à fibres végétales= Effect of hygrothermal treatment on the mechanical properties of natural fibres composites," *Recueil des résumés et comptes rendus des 16èmes Journées Nationales sur les Composites*, 2009.
- [14] S. Panthapulakkal and M. Sain, "Studies on the water absorption properties of short hemp—glass fiber hybrid polypropylene composites," *Journal of composite materials*, vol. 41, pp. 1871-1883, 2007.
- [15] T. Chen, W. Liu, and R. Qiu, "Mechanical Properties and Water Absorption of Hemp Fibers—Reinforced Unsaturated Polyester Composites: Effect of Fiber Surface Treatment with a Heterofunctional Monomer," *BioResources*, vol. 8, 2013.

- [16] H. Fang, Zhang, Y., Deng, J. and Rodrigue, D. , "Effect of fiber treatment on the water absorption and mechanical properties of hemp fiber/polyethylene composites. ," *J. Appl. Polym. Sci.*, 127: 942–949. doi: 10.1002/app.37871, (2013).
- [17] M. M. Thwe and K. Liao, "Effects of environmental aging on the mechanical properties of bamboo–glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 33, pp. 43-52, 2002.
- [18] H. M. Akil, L. W. Cheng, Z. A. Mohd Ishak, A. Abu Bakar, and M. A. Abd Rahman, "Water absorption study on pultruded jute fibre reinforced unsaturated polyester composites," *Composites Science and Technology*, vol. 69, pp. 1942-1948, 9// 2009.
- [19] A. Shahzad, "Effects of water absorption on mechanical properties of hemp fiber composites," *Polymer Composites*, vol. 33, pp. 120-128, 2012.
- [20] X. Li, L. G. Tabil, and S. Panigrahi, "Chemical treatments of natural fiber for use in natural fiber-reinforced composites: a review," *Journal of Polymers and the Environment*, vol. 15, pp. 25-33, 2007.
- [21] P. Sreekumar, S. P. Thomas, K. Joseph, G. Unnikrishnan, and S. Thomas, "Effect of fiber surface modification on the mechanical and water absorption characteristics of sisal/polyester composites fabricated by resin transfer molding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, pp. 1777-1784, 2009.
- [22] N. Lu, S. Oza, and I. Ferguson, "Effect of Alkali and Silane Treatment on the Thermal Stability of Hemp Fibers as Reinforcement in Composite Structures," *Advanced Materials Research*, vol. 415, pp. 666-670, 2012.
- [23] H. Fang, Y. Zhang, J. Deng, and D. Rodrigue, "Effect of fiber treatment on the water absorption and mechanical properties of hemp fiber/polyethylene composites," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 127, pp. 942-949, 2013.
- [24] A. J. S. a. L. A. ZANSZNT, "THE BONDING FORCE OF CELLULOSIC MATERIALS FOR WATER (FROM SPECIFIC VOLUME AND THERMAL DATA) " *UNITED STATES DEPARTMENT OF AGRICULTURE FOREST SERVICE FOREST PRODUCTS LABORATORY Madison, Wisconsin In Cooperation with the University of Wisconsin*, October 1937.
- [25] C. L. Tsai and I. Hung, "Characterization of principal diffusivities of composites by suspension method," *Composites Science and Technology*, vol. 66, pp. 2837-2843, 2006.
- [26] J. Mercier, "Prise en compte du vieillissement et de l'endommagement dans le dimensionnement de structures en matériaux composites," *École Nationale Supérieure des Mines de Paris*, 2006.
- [27] A. R. Allnatt and A. B. Lidiard, *Atomic transport in solids*: Cambridge Univ Pr, 2003.
- [28] J. Crank, *The mathematics of diffusion*: Oxford university press, 1979.
- [29] A. Stamboulis, C. Baillie, S. Garkhail, H. Van Melick, and T. Peijs, "Environmental durability of flax fibres and their composites based on polypropylene matrix," *Applied composite materials*, vol. 7, pp. 273-294, 2000.
- [30] A. A. H. Alamri, and I.M. Low, "Mechanical Properties and Moisture Absorption Behaviour of Cellulose-Fibre Reinforced Polymer Composites," *Centre for Materials Research, Department of Imaging & Applied Physics, Curtin University of Technology, Perth, Australia*, 2010.

- [31] J. Philibert, *Atom movements: diffusion and mass transport in solids*: L'Editeur: EDP Sciences, 1991.
- [32] T.-W. Chang, C. H. Wang, and C.-L. Tsai, "Advancing boundary model for moisture diffusion in a composite laminate," *Journal of composite materials*, vol. 42, pp. 957-973, 2008.
- [33] S. Yoon, B. Han, and W. ZHAOYANG, "On moisture diffusion modeling using thermal-moisture analogy," *Journal of electronic packaging*, vol. 129, pp. 421-426, 2007.
- [34] A. Aghfir, S. Akkad, M. Rhazi, C. Kane, and M. Kouhila, "Détermination du coefficient de diffusion et de l'énergie d'activation de la menthe lors d'un séchage conductif en régime continu," *Revue des Energies Renouvelables*, vol. 11, pp. 385-394, 2008.
- [35] M. Gigliotti, "Vieillessement, Durabilité et Dégradation de Matériaux Composites Soumis à des Environnements Agressifs," *Comptes-rendus des 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17)*, 2011.
- [36] Y. Ledru, "Etude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques," 2009.
- [37] J. Verdu, "Action de l'eau sur les plastiques," *Paris, Techniques de l'ingénieur*, vol AM, vol. 3, p. 165.
- [38] H. Hargitai, "Reinforcing of polypropylene with hydrophil fibers," Phd Thesis, Budapest University of Technology and Economics Department of Polymer Engineering, 2004.
- [39] A. A. Klyosov, *Wood-plastic composites*: Wiley. com, 2007.
- [40] J. P. Mercier, W. Kurz, and G. Zambelli, *Traité des matériaux: Tome 1, Introduction à la science des matériaux* vol. 1: PPUR presses polytechniques, 1999.
- [41] P. Combette and I. Ernoult, *Physique des polymères* vol. 2: Presses inter Polytechnique, 2005.
- [42] H. Nouri, "Modélisation et identification de lois de comportement avec endommagement en fatigue polycyclique de matériaux composite a matrice thermoplastique," *Engineering fracture mechanics*, vol. 25, pp. 793-808, 2009.
- [43] A. Andriyana, "Définition d'une nouvelle grandeur prédictive pour la durée de vie en fatigue des matériaux élastomères," 2006.
- [44] M. K. L. FATMI, R. BARBAOUI, A. EL MAHI & S. BEMEDAKHENE "Damage analysis by acoustic emission in laminate composite subjected to different levels of loading."
- [45] ASTM, "ASTM D638-97, Test Method for Tensile " 1997.
- [46] ISO, "ISO Standard. Plastics - Determination of tensile properties," 1993.
- [47] H. Hargitai, "REINFORCING OF POLYPROPYLENE WITH HYDROPHIL FIBERS," ed: PhD értekezés, Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Polimertechnika Tanszék, Budapest, 2004.
- [48] M. HARCHAY and H. BEN DALY, "Effet de la nature et des caractéristiques du milieu d'immersion sur le comportement hygrothermique des composites polyester/fibre de verre," 2011.
- [49] J. R. Vinson, *Advanced composite materials--environmental effects: a symposium* vol. 658: ASTM International, 1978.
- [50] D. Landolt, *Corrosion et chimie des surfaces des métaux* vol. 12: PPUR presses polytechniques, 1993.



- [51] P. D. Guy Collin. (2012-06-12). Available: [http://wwwens.ugac.ca/chimie/Chimie\\_physique/cadres/Cadre\\_chap\\_10.htm](http://wwwens.ugac.ca/chimie/Chimie_physique/cadres/Cadre_chap_10.htm)
- [52] C. H. Shen and G. S. Springer, "Moisture absorption and desorption of composite materials," *Journal Of Composite Materials*, vol. 10, pp. 2-20, 1976.
- [53] M. HARCHAY and H. B. E. N. DALY, "Effet de la nature et des caractéristiques du milieu d'immersion sur le comportement hygrothermique des composites polyester/fibre de verre."
- [54] P. W. Atkins, *Chimie: molécules, matière, métamorphoses*: De Boeck Supérieur, 1998.
- [55] A. Shahzad, "Effects of water absorption on mechanical properties of hemp fiber composites.," *Polym Compos*, 33: 120–128. doi: 10.1002/pc.21254, (2012).
- [56] J. Comyn, *Polymer permeability*: Springer, 1985.
- [57] P. Guiraldenq, "Diffusion dans les métaux," *Etude et propriétés des métaux*, vol. 55, p. 1, 1978.
- [58] A. Fortin and A. Garon, "Les éléments finis: de la théorie à la pratique," *Notes de cours*, 2000.
- [59] W. Jost, "Diffusion in solids, liquids, gases," 1960.
- [60] P. K. Kushwaha and R. Kumar, "Studies on water absorption of bamboo-polyester composites: Effect of silane treatment of mercerized bamboo," *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, vol. 49, pp. 45-52, 2009.
- [61] S. Panthapulakkal and M. Sain, "Studies on the water absorption properties of short hemp—glass fiber hybrid polypropylene composites," *Journal Of Composite Materials*, vol. 41, p. 1871, 2007.
- [62] Y. Weitsman, "Diffusion with time-varying diffusivity, with application to moisture-sorption in composites," *Journal Of Composite Materials*, vol. 10, pp. 193-204, 1976.
- [63] R.-J. Yeh, P.-W. Lin, and K.-F. Lin, "Two-Stage Moisture Absorption Behavior and Hydrolysis of Cured Dicyanate Ester Resins," *Journal of Polymer Research*, vol. 9, pp. 31-36, 2002.
- [64] W. Feng, "Caractérisation expérimentale et simulation physique des mécanismes de dégradation des interconnexions sans plomb dans les technologies d'assemblage a très forte densité d'intégration «boitier sur boitier»,» 2010.
- [65] T. Tee, "Methodology for Integrated Vapor Pressure, Hygroswelling, and Thermo-mechanical Stress Modeling of IC Packages," *Moisture Sensitivity of Plastic Packages of IC Devices*, pp. 221-243, 2010.
- [66] G. Dhatt and G. Touzot, *Une présentation de la méthode des éléments finis*: Maloine; Québec: Presses de l'Université Laval, 1981.
- [67] A. Bismarck, I. Aranberri-Askargorta, J. Springer, T. Lampke, B. Wielage, A. Stamboulis, *et al.*, "Surface characterization of flax, hemp and cellulose fibers; surface properties and the water uptake behavior," *Polymer composites*, vol. 23, pp. 872-894, 2002.